



Short Paper

مقاله کوتاه

## بازیافت ایزوتوپ غنی شده و پایدار ۹۸-Mo از کلکتور گرافیتی دستگاه EMIS و تصفیه شیمیایی آن

جواد گروسی\*، حسن نورکجوری، پروین سرآبادانی، بابک زینلی

مرکز تحقیقات کشاورزی و پزشکی هسته‌ای، سازمان انرژی اتمی ایران، صندوق پستی: ۴۹۸-۳۱۴۸۵، کرج - ایران

**چکیده:** بازیافت و تصفیه ایزوتوپ غنی شده مولیبدن ۹۸ که بوسیله دستگاه جداکننده الکترومغناطیسی ایزوتوپها در مرکز کرج بر روی پاکت گرافیتی جمع‌آوری شده، نخستین بار است که به روش شیمیایی در ایران انجام گرفته است. در این کار پژوهشی، ابتدا با خراشیدن سطوح پاکت گرافیتی که ایزوتوپ مولیبدن ۹۸ بر روی آن انباشته شده بود، مخلوطی از پودر گرافیت و مولیبدن به دست آمد؛ سپس با استفاده از کوره الکتریکی با عبور دادن گاز اکسیژن در دمای  $850^{\circ}\text{C}$  تری اکسید مولیبدن ( $\text{MoO}_3$ ) تشکیل و گرافیت به صورت دی‌اکسید کربن خارج شد. در مرحله بعد، از محلول آمونیاک گرم و غلیظ برای انحلال اکسید مولیبدن استفاده شد و در شرایط قلیایی، ناخالصی عمده آهن به صورت هیدروکسید آهن (III) رسوب کرد. پس از آن با اسید سولفوریک محیط را اسیدی کرده و با افزودن کیلات دهنده آلفا بنزوئین آکسیم، کمپلکس آلی-فلزی مولیبدن به صورت رسوب به دست آمد. رسوب حاصل، پس از صاف و خشک شدن، درون کوره الکتریکی در دمای  $500^{\circ}\text{C}$  درجه سانتی‌گراد سوزانده و به اکسید مولیبدن تبدیل شد. ساختار مولکولی این اکسید به وسیله اسپکتروسکوپی پراش پرتوهای ایکس (XRD) تأیید و در نهایت، با استفاده از طیف‌سنج نشر اتمی (ICP) خلوص شیمیایی محصول معادل  $97.44\%$  تعیین شد.

**واژه‌های کلیدی:** بازیافت، تصفیه شیمیایی، مولیبدن ۹۸، پاکت گرافیتی، آلفا بنزوئین آکسیم

## Recovery of Mo-98 Enriched Stable Isotope from Graphite Collector of EMIS and its Chemical Purification

J. Garousi\*, H. Noorkojouri, P. Sarabadani, B. Zeinali

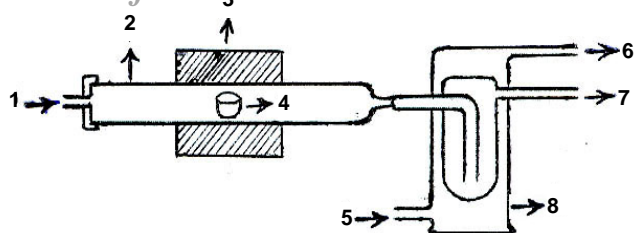
Nuclear Research Centre for Agriculture and Medicine, AEOL, P.O. Box: 31485-498, Karaj - Iran

**Abstract:** Recovery and chemical purification of Mo-98 from graphite collector which was separated by EMIS were made for the first time in Iran. In this research work, metallic Mo-98 isotope deposited on the internal surface of graphite was separated from pocket by scraping. Then, carbon was removed from the mixture of molybdenum and graphite by burning at  $850^{\circ}\text{C}$  in oxygen atmosphere in the form of  $\text{CO}_2$  and molybdenum was converted to oxide form ( $\text{MoO}_3$ ). Molybdenum tri-oxide was dissolved in hot and concentrated ammonia solution. In alkaline condition, the major impurity of Fe as hydroxide form was precipitated. In the next step, after acidifying the solution by sulfuric acid,  $\alpha$ -benzoin oxime was added, and molybdenum organometallic complex was formed. The complex was filtrated, dried and ignited at  $500^{\circ}\text{C}$  in electrical furnace. Finally,  $^{98}\text{MoO}_3$  was obtained. The crystalline structure of  $\text{MoO}_3$  was confirmed by X-ray Diffraction (XRD) and its chemical purity of  $97.44\%$  was determined using the ICP-emission spectrometer.

**Keywords:** Recovery, Chemical Purification, Mo-98, Graphite Collector,  $\alpha$ -Benzoin Oxime

\*email: JGAROUSI@yahoo.com

تاریخ دریافت مقاله: ۸۴/۴/۲۷ تاریخ پذیرش مقاله: ۸۵/۲/۳

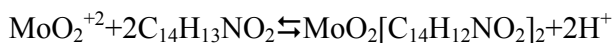


- 1- O<sub>2</sub> gas inlet
- 2- quartz tube
- 3- thermal zone (800-850 °C)
- 4- crucible consisting mixture of Mo-98 and graphite
- 5- water cooling inlet
- 6- water cooling outlet
- 7- CO<sub>2</sub> gas outlet
- 8- cold trap

شکل ۱- نمای شماتیک از کوره الکتریکی تیوبی (کوارتز) به همراه تله سرد شیشه‌ای.

خارج کردن از بوته چینی در نواحی سرد تیوب سیلیکایی، بویژه در ناحیه تله سرد انباشته شد [۲].

تری‌اکسیدمولیبدن انباشته شده را به وسیله محلول آمونیاک گرم و غلیظ از سطوح داخلی بوته چینی، تیوب سیلیکایی و تله سرد استخراج کرده سپس تا مرحله خشک کردن، حرارت دادیم [۳]. با افزودن آب، ناخالصی آهن III را که در اثر حرارت دادن، از آهن II حاصل و به رسوب هیدروکسید آهن III قهوه‌ای رنگ تبدیل شده بود، با استفاده از صافی کاغذی جدا کردیم [۴] و [۵]. با افزودن اسید سولفوریک، pH محلول باقیمانده را در محدوده ۰/۷ تا ۱/۲ تنظیم کرده، سپس برای بازیافت مولیبدن، از محلول ۲ درصد آلفا بنزوئین اُکسیم در حلال الکی به نسبت وزنی ۱۰ برابر مولیبدن اولیه (۲۰۰ میلی‌گرم) استفاده کردیم. لذا ۲ گرم آلفا بنزوئین اُکسیم را در ۱۰۰ میلی‌لیتر اتانول حل کرده و آن را به محلول اسیدی حاوی مولیبدن اضافه کردیم. بر اساس واکنش زیر کمپلکس آلی فلزی مولیبدن راسب شد [۶].



محلول حاوی کمپلکس مولیبدن را به مدت ۲۴ ساعت راکد نگه داشته سپس آن را تصفیه و در کوره الکتریکی تحت دمای ۵۰۰ درجه سانتی‌گراد به مدت ۳ ساعت حرارت دادیم. در این دما کاغذ صافی به همراه کمپلکس‌دهنده آلی آلفا بنزوئین اُکسیم سوزانده شده و مولیبدن به صورت تری‌اکسیدمولیبدن (<sup>۹۸</sup>MoO<sub>۳</sub>) به دست آمد.

## ۱- مقدمه

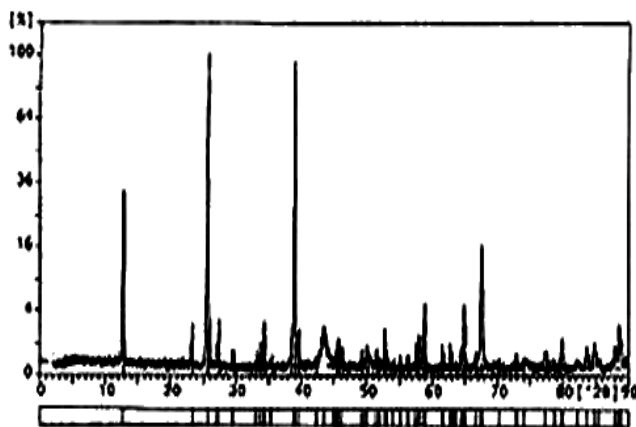
ایزوتوپ غنی‌شده <sup>۹۸</sup>Mo به عنوان ماده اولیه تولید رادیوایزوتوپ <sup>۹۹m</sup>Tc، طی واکنش هسته‌ای (n, γ) مورد استفاده قرار می‌گیرد [۱]. غنی‌سازی این ایزوتوپ با دستگاه جداکننده الکترومغناطیسی ایزوتوپی (EMIS) انجام شد و جمع‌آوری آن بر روی کلکتور گرافیتی صورت گرفت. برای کاربرد این ایزوتوپ به عنوان هدف در واکنش‌های هسته‌ای لازم بود فرایند بازیافت و خالص‌سازی بر روی آن انجام شود. خلوص شیمیایی این ایزوتوپ اهمیت بسیار زیاد دارد، زیرا وجود ناخالصی‌ها در حد مقادیر کم نیز سبب ایجاد رادیوایزوتوپ‌های ناخواسته در طی واکنش هسته‌ای می‌شود. منشأ ناخالصی‌ها ممکن است مواد سازنده کلکتور، قطعات چشمه یونی و مواد اولیه به کار رفته در روش غنی‌سازی الکترومغناطیسی باشد. لزوم انجام فرایند خالص‌سازی ایزوتوپ‌ها به ویژه هنگامی اهمیت می‌یابد که ناخالصی‌هایی از نوع ایزوبار به همراه ایزوتوپ موردنظر، مانند <sup>۹۸</sup>Ru در روش غنی‌سازی الکترومغناطیسی در یک پاکت جمع‌آوری شوند. بنابراین، همانگونه که خلوص ایزوتوپی نمونه‌های هدف یکی از نیازمندیهای تولید رادیوایزوتوپها است، خالص‌سازی شیمیایی ایزوتوپهای پایدار نیز از ضرورت‌های دیگر این فرایند برای جلوگیری از تولید رادیونوکلئیدهای مزاحم می‌باشد.

## ۲- روش کار

عملیات بازیافت و پالایش بر روی ۲۰۰ میلی‌گرم <sup>۹۸</sup>Mo جمع‌آوری شده روی سطح کلکتور گرافیتی، با خراشیدن سطح به وسیله تیغه‌ای شیشه‌ای شروع شد. در این مرحله مخلوطی از پودر گرافیت و مولیبدن فلزی به دست آمد. این مخلوط به یک بوته چینی منتقل و مجموعه در تیوب سیلیکایی یک کوره الکتریکی تیوب‌دار در جو حاوی اکسیژن قرار داده شد. در شکل ۱ نمای شماتیک از کوره الکتریکی دارای تیوب کوارتز و تله سرد که برای این کار طراحی شده نشان داده شده است. با اعمال دمای بین ۸۵۰-۸۰۰ درجه سانتی‌گراد به همراه دمیدن گاز اکسیژن به درون تیوب، واکنش سوختن گرافیت و تبدیل آن به CO<sub>۲</sub> و خروج آن از درون کوره انجام شد. در این شرایط مولیبدن فلزی نیز به تری‌اکسیدمولیبدن تبدیل شده و پس از

### ۳- یافته‌ها و بحث

جمع‌آوری ایزوتوپ مولیبدن ۹۸ بر روی سطوح داخلی پاکت گرافیتی بهترین انتخاب است و این به دلیل محدودیت در استفاده از انواع دیگر مواد، مانند مس، آلومینیوم، فولاد زنگ نزن و... می‌باشد زیرا این جمع‌آوری سبب ایجاد پوشش سخت بر سطوح فلزی می‌شود که به روشهای متداول فیزیکی و شیمیایی قابل جداسازی نیست، در حالی که جداسازی ایزوتوپ مولیبدن از گرافیت به روش ساده‌ی خراشیدن امکان‌پذیر است. جداسازی ناخالصی عمده گرافیت از ایزوتوپ مولیبدن ۹۸ فلزی به وسیله سوزاندن مخلوط آنها در کوره الکتریکی تیوبی سیلیکایی همراه با میدن گاز اکسیژن، موجب دستیابی به دو هدف می‌شود: اول آن که گرافیت به صورت دی‌اکسید کربن از مخلوط گرافیت و مولیبدن حذف می‌گردد، دوم آن که مولیبدن فلزی به اکسیدمولیبدن ( $MoO_3$ ) تبدیل و در ناحیه سرد کوره (تله سرد) انباشته می‌شود. قابلیت انحلال اکسیدمولیبدن در محلول‌های قلیایی از جمله آمونیاک بیشتر از سایر محلول‌ها است، بنابراین برای جداسازی آن از محلول گرم و غلیظ آمونیاک استفاده شد. در محیط قلیایی، حرارت دادن سبب تبدیل آهن II به آهن III و در نهایت تشکیل هیدروکسید قهوه‌ای رنگ آن شد که به آسانی با صافی کاغذی جدا می‌شود. تنظیم pH اسیدی با اسید سولفوریک در محدوده ۱/۲-۰/۷ انجام شد. زیرا در این محدوده pH، میزان تشکیل کمپلکس آلی فلزی مولیبدن نسبت به سایر غلظتها ۱۰۰٪ می‌باشد [۶]. آلفا بنزوئین اکسیم به عنوان یک کمپلکس‌دهنده انتخابی نسبت جرمی ( $\alpha BZ/Mo=10:1$ ) ۱۰ به ۱ برای مولیبدن سبب حذف ناخالصی‌ها و تشکیل رسوب پایدار می‌شود. برای تهیه رسوبی بصورت پایدار و قابل توزین، کمپلکس تهیه شده به اکسید مولیبدن ( $MoO_3$ ) تبدیل شد. این محصول نهایی توسط دستگاه پراش پرتوهای ایکس (XRD) مدل PW-1800 مورد تأیید قرار گرفت. طیف XRD نمونه آزمایش شده در شکل ۲ و مقایسه مقادیر  $2\theta$  آن با استاندارد  $MoO_3$  در جدول ۱ آورده شده است. و خلوص شیمیایی اکسید مولیبدن به وسیله دستگاه طیف‌سنج نشر اتمی (ICP) مدل JY-124 تعیین گردید که نتایج آن در جدول ۲ مندرج است. بر اساس نتایج ارائه شده در جدول ۲ خلوص شیمیایی محصول نهائی معادل ۹۷/۴۴٪ به دست آمد.



شکل ۲- طیف پراش پرتو ایکس (XRD) اکسید مولیبدن.

جدول ۱- مقایسه XRD نمونه آزمایش شده با استاندارد  $MoO_3$ .

استاندارد	نمودار آزمایش شده
$2\theta^\circ$	$2\theta^\circ$
12.763	12.735
23.327	23.290
25.703	25.660
27.333	27.250
33.126	33.060
33.729	33.715
38.973	38.920
39.652	39.030
58.802	58.765
64.927	64.845
67.523	67.505

جدول ۲- نتایج آنالیز ایزوتوپ مولیبدن ۹۸ به وسیله ICP.

عنصر	Cu	Fe	Co	Ni	Zn	Mo
غلظت (%)	Neg.*	۲/۱۴	۰/۰۱۹	Neg.*	۰/۱۰۲	۹۷/۴۴

\* مقادیر اندازه‌گیری شده Cu و Ni کمتر از حد تشخیص دستگاه می‌باشد.

### ۴- نتیجه‌گیری

با انجام فرایند تولید مولیبدن ۹۸ و تصفیه شیمیایی آن، ما توانسته‌ایم نخستین بار گامی مثبت در جهت خودکفایی در زمینه تهیه ماده اولیه برای تولید رادیوداروی تکنسیوم ۹۹، که به عنوان یک رادیوداروی با ارزش در پزشکی هسته‌ای مطرح است، با موفقیت برداریم و به دلیل مشابهت بازیافت و تصفیه شیمیایی این ایزوتوپ با سایر ایزوتوپ‌های ارزشمند مولیبدن، این روش را می‌توانیم به آنها نیز تعمیم دهیم.

## تشکر و قدردانی

در اینجا لازم است از کلیه همکاران گروه کارگردانی EMIS به دلیل جداسازی ایزوتوپهای مولیبدن و آقای مهندس علی نبی‌پور به سبب همکاری در انجام عملیات حرارتی و خانم مهندس نرگس افشاری به دلیل انجام طیف‌سنجی XRD تشکر و قدردانی نمایم.

## پی‌نوشت:

۱- EMIS: Electromagnetic Isotope Separator

## References:

۱. علی‌پور، "مباحثی از رادیو فارماسی دانشگاه اصفهان"، ۲۳۷، (۱۳۶۸).
2. Boyd Weaver, "Electromagnetic separation of isotopes," Chemical Refinement Procedures in Oak Ridge National Laboratory Report, Aug. 8, (1955).
3. F. Albert Cotton, Geoffrey Wilkinson, Paul L. Gaus., "Basic Inorganic Chemistry," Wiley, 3rd Edition, 529, (1995).
4. Arthur Israel Vogel, "Vogel's textbook of quantitative inorganic analysis: including elementary instrumental analysis," Longman, 5th edition, 611, (1996).
5. N.J. Anderson, L.O. Kolarik, E.A. Swinton, D.E. Weiss, "Colour and turbidity removal with reusable magnetic particles-III immobilized metal hydroxide gels," 16(8), 1327-1334 (1982).
6. D.Wu, S. Landsberger, B.A. Buchholz, G.F. Vandegrift, "Processing of Leu Target for Mo-99 production testing and modification of the cintichem process," 1995 International Meeting on Reduced Enrichment for Research and Test Reactor, paris. France sep. 18-21, (1994).