



П.Л. Молканов

Разделение изотопов реакторного палладия на масс-сепараторе ИРИС

НИР по теме «Отделение ^{107}Pd от смеси реакторного палладия»

Договор от 20.03.2025 г. № 94-300-1/2025/217/21629-Д

Наименование работ: Отделение ^{107}Pd от смеси реакторного палладия

Заказчик - АО «Радиевый институт им. В. Г. Хлопина»

Исполнитель - НИЦ «Курчатовский институт» - ТИЯФ

Стоимость работ: 7 000 000 рублей

Срок выполнения работ - с 20.03.2025 г. по 31.10.2025 г.

Основные требования к выполнению работы:

- ✓ в ходе работ провести испытание процесса разделения изотопов на «природном» палладии
- ✓ в экспериментально подтвержденных условиях провести отделение ^{107}Pd от смеси изотопов «реакторного» палладия
- ✓ подготовить отчетную документацию в соответствии с Календарным планом - до 13.10.2025 г.

Перечень отчетной документации:

- Отчет о НИР
- Программа и методика испытаний
- Акт испытаний

Исполнители НИР:

В.Н. Пантелеев

П.Л. Молканов

М.Д. Селиверстов

Д.В. Федоров

А.Е. Барзах



Владимир Николаевич Пантелеев

13.10.1946 - 28.08.2025

ОЯТ – отходы или ценное сырье?

Экономика отработавшего ядерного топлива (ОЯТ):

- ✓ ОЯТ – радиоактивные отходы (РАО) с дорогой утилизацией
- ✓ ОЯТ – потенциальный источник многих уникальных элементов и изотопов

Что делать с ОЯТ:

- Захоронение в глубокой геологии (США, Канада, Швеция, Финляндия)
- Промежуточное хранение (США, Россия, Франция, Англия, Индия)
- Развитие технологий переработки (Россия, Франция, Англия, Индия)

В России из реакторов АЭС ежегодно выгружают около 650 т ОЯТ:
85% - промежуточное хранение, 15% - переработка

Цели переработки ОЯТ:

- 1) получить из ОЯТ делящиеся материалы: Pu-239, U-235, Pu-241, U-233
- 2) извлечь из продуктов деления (≈ 70 изотопов 25 элементов) элементы, представляющие коммерческий интерес:
металлы платиновой группы (МППГ) - Ru, Rh, Pd

Расчетное содержание металлов платиновой группы в тонне ОЯТ реактора ВВЭР-1000
(*Serpent Monte Carlo code*)

Элемент	Масса, кг/т ОЯТ
Рутений	3.04
Родий	0.60
Палладий	1.94

Радиоактивность «реакторных» МТПГ

Характеристики радиоактивных изотопов «реакторных» МТПГ и их ограничения

Элемент	Изотоп	Период полураспада	Удельная активность, Бк/г	МЗУА, Бк/г	МЗА, Бк	Выдержка, лет
Рутений	^{106}Ru	373.59 сут	8.05E+09	1.00E+02	1.00E+05	~ 27
Родий	^{102}Rh	207.0 сут	2.22E+03	1.00E+01	1.00E+06	~ 5
	$^{102\text{m}}\text{Rh}$	3.74 года	1.03E+03	1.00E+02	1.00E+06	~ 13
Палладий	^{107}Pd	6.5 млн лет	2.91E+06	1.00E+05	1.00E+08	~ 32 млн

По регламентирующим документам (НП-067-16, НРБ-99/2009) «реакторные» МТПГ подлежат учету и контролю в СГУК РВ и РАО, пока **активность** и **удельная активность** \geq **МЗА** и **МЗУА** одновременно.

Как работать с «реакторным» палладием:

- ✓ использовать палладий только в атомной отрасли
- ✓ разбавлять «природным» палладием
- ✓ разработать экономически приемлемый метод удаления Pd-107 (содержание в ОЯТ - от 14 до 16% массы палладия)

Возможные методы удаления Pd-107:

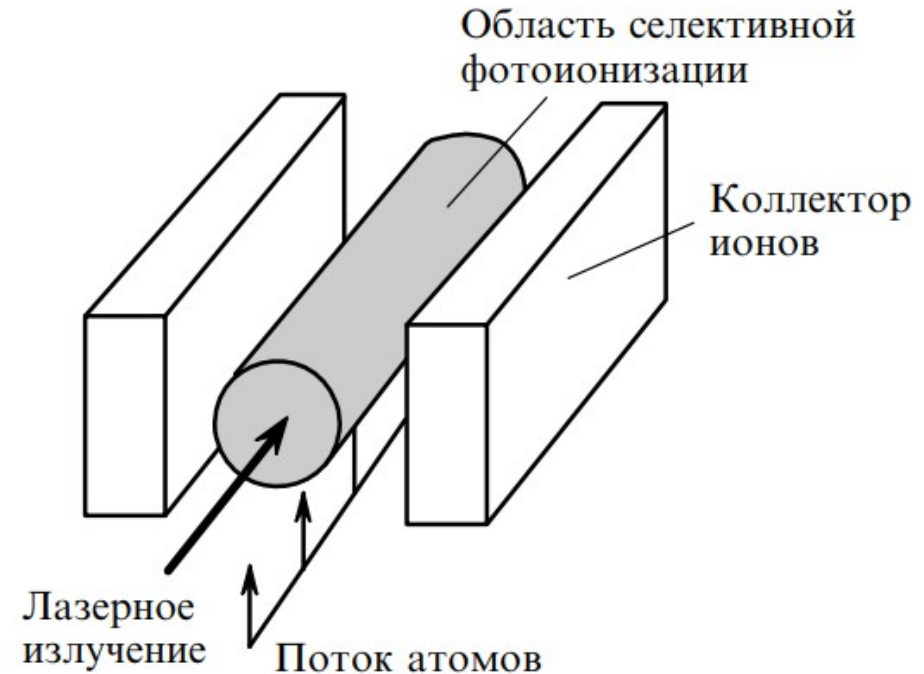
- лазерное разделение изотопов в атомарных парах (AVLIS)
- метод электромагнитной сепарации (ЭМС)
- использование резонансной фотоионизации в лазерном ионном источнике с последующим разделением по массам в магнитном поле масс-сепаратора

AVLIS (Atomic Vapor Laser Isotope Separation)

Процесс разделения изотопов:

- ✓ Получение пара рабочего элемента, содержащего естественную смесь изотопов
- ✓ Селективная ионизация нужного изотопа с помощью лазерного излучения
- ✓ Экстракция ионов, имеющих обогащенный изотопный состав, из пара и их транспортировка на коллектор
- ✓ Обработка коллектора ионов химическими методами

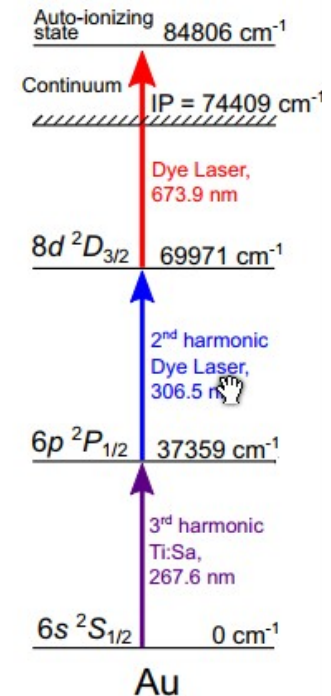
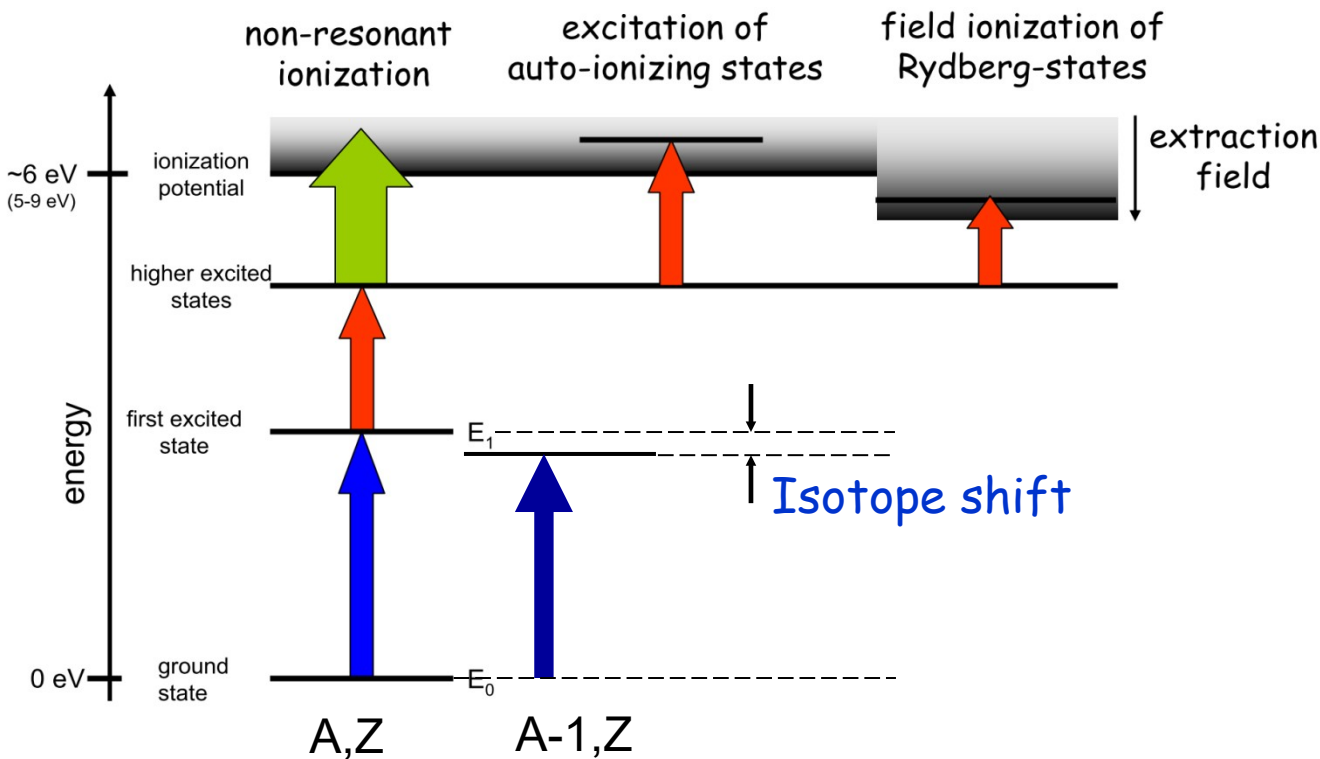
Схема метода лазерного разделения изотопов



Где используется метод ПРИ:

- Получение сравнительно больших количеств (≈ 1 т/год) слабообогащенного продукта (например, U-235) для ядерной энергетики
- Получение высокообогащенных изотопов в небольших количествах для медицинских целей
- Получение изобарно-чистых пучков радиоактивных короткоживущих изотопов для научных исследований

Изотопический сдвиг оптических линий



Лазерное разделение изотопов основано на использовании эффекта изотопического сдвига оптических линий.

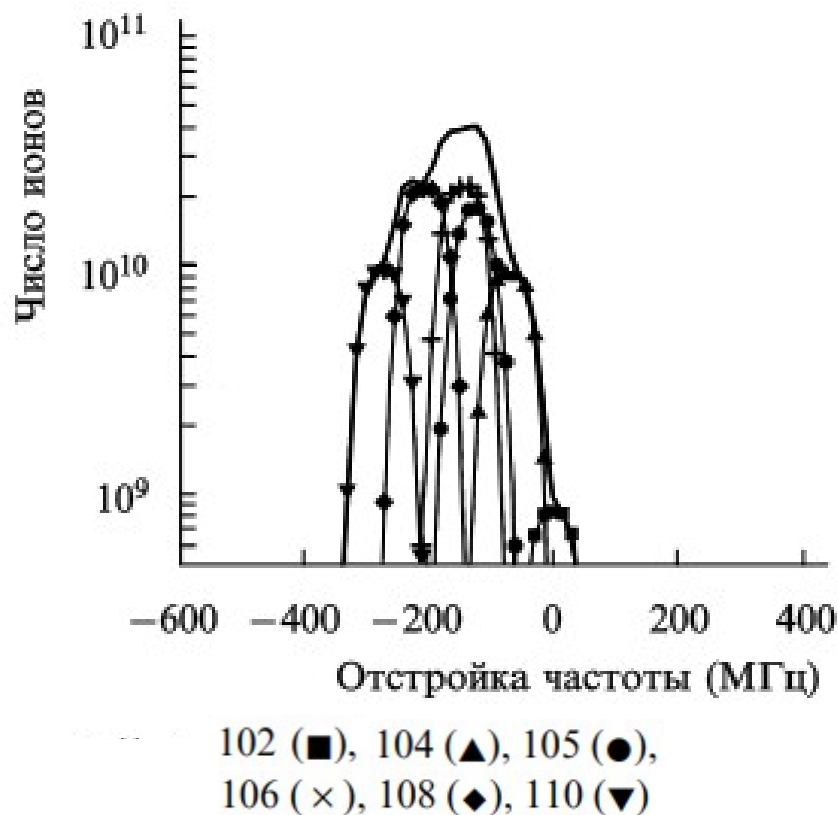
Для различных изотопов одного и того же элемента вследствие различия в массе и размере атомных ядер изотопов некоторые линии в оптических спектрах оказываются сдвинутыми по частоте

Лазерное разделение изотопов (ЛРИ) палладия

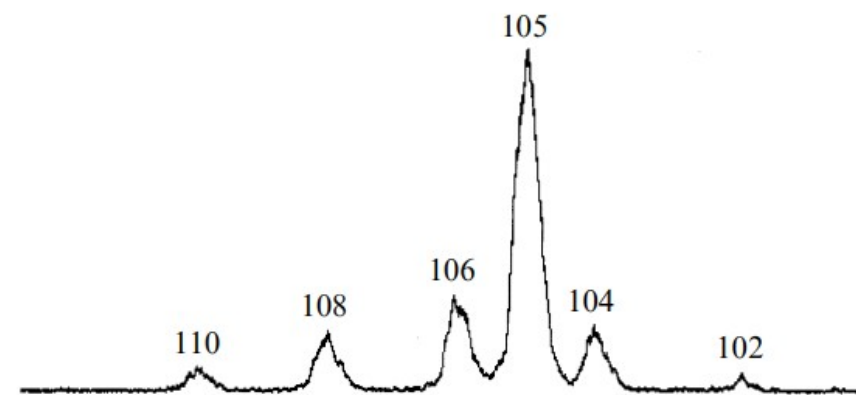
Почему ЛРИ палладия малоэффективно:

- малая величина ИС изотопов палладия по отношению к спектральной ширине излучения лазеров и доплеровскому уширению линии поглощения атомов
- сверхтонкого расщепления оптических линий изотопов с отличными от нуля моментами ядер

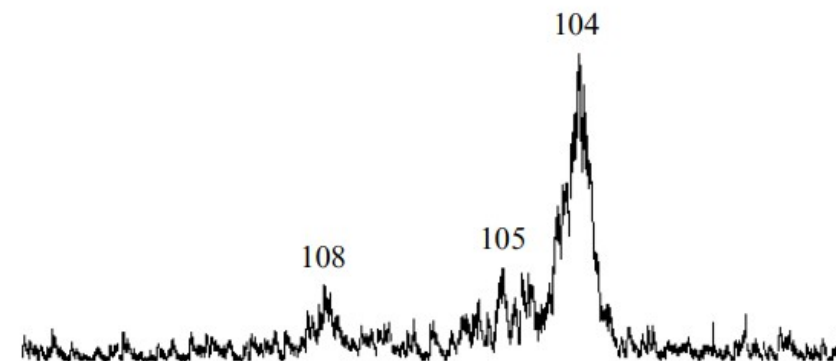
Расчет изотопического состава ионов Pd



Масс-спектрограмма с преимущественным обогащением изотопом Pd-105 (с 22% до 60%)

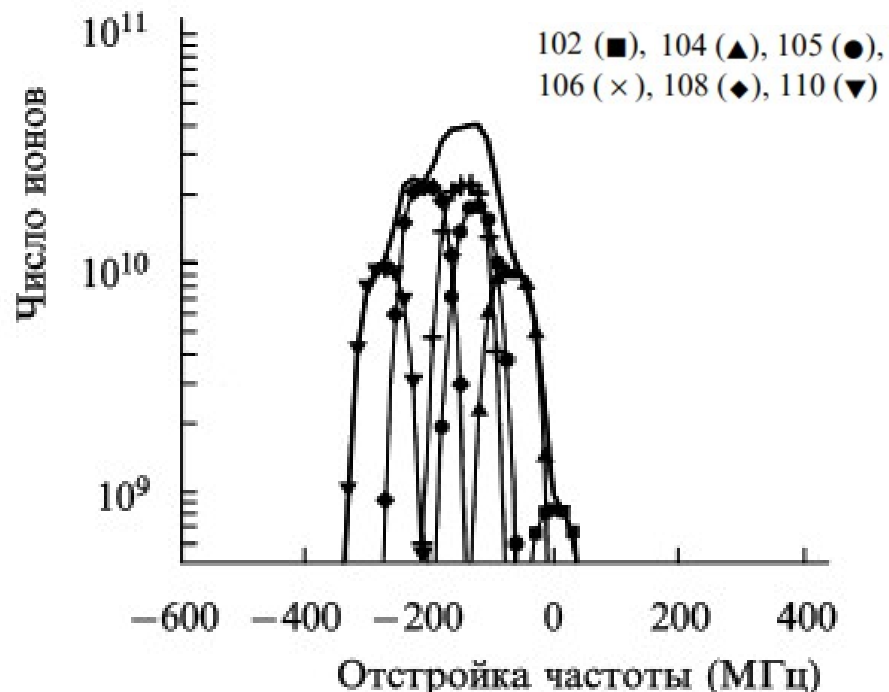


Масс-спектрограмма с преимущественным обогащением изотопом Pd-104 (с 11% до 70%)

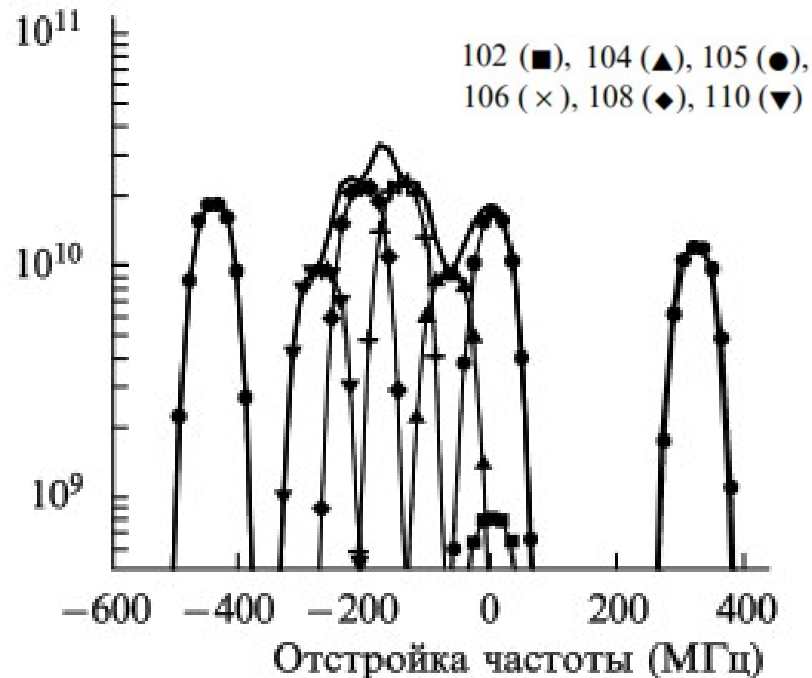


Лазерное разделение изотопов (ЛРИ) палладия в магнитном поле

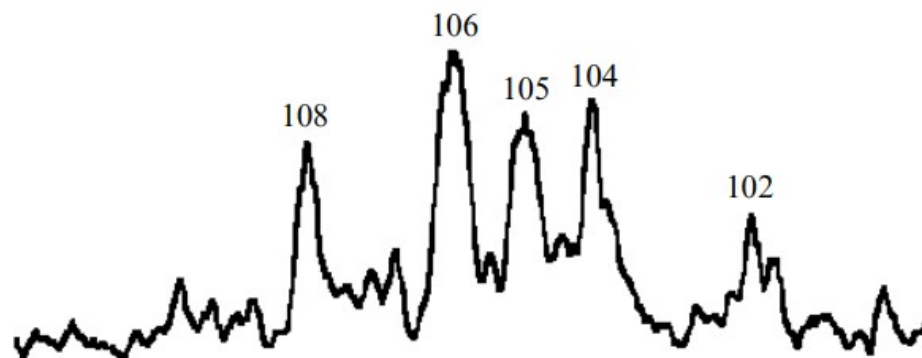
Расчет изотопического состава ионов Pd в отсутствии магнитного поля



Расчет изотопического состава ионов Pd в магнитном поле 2000 Гс



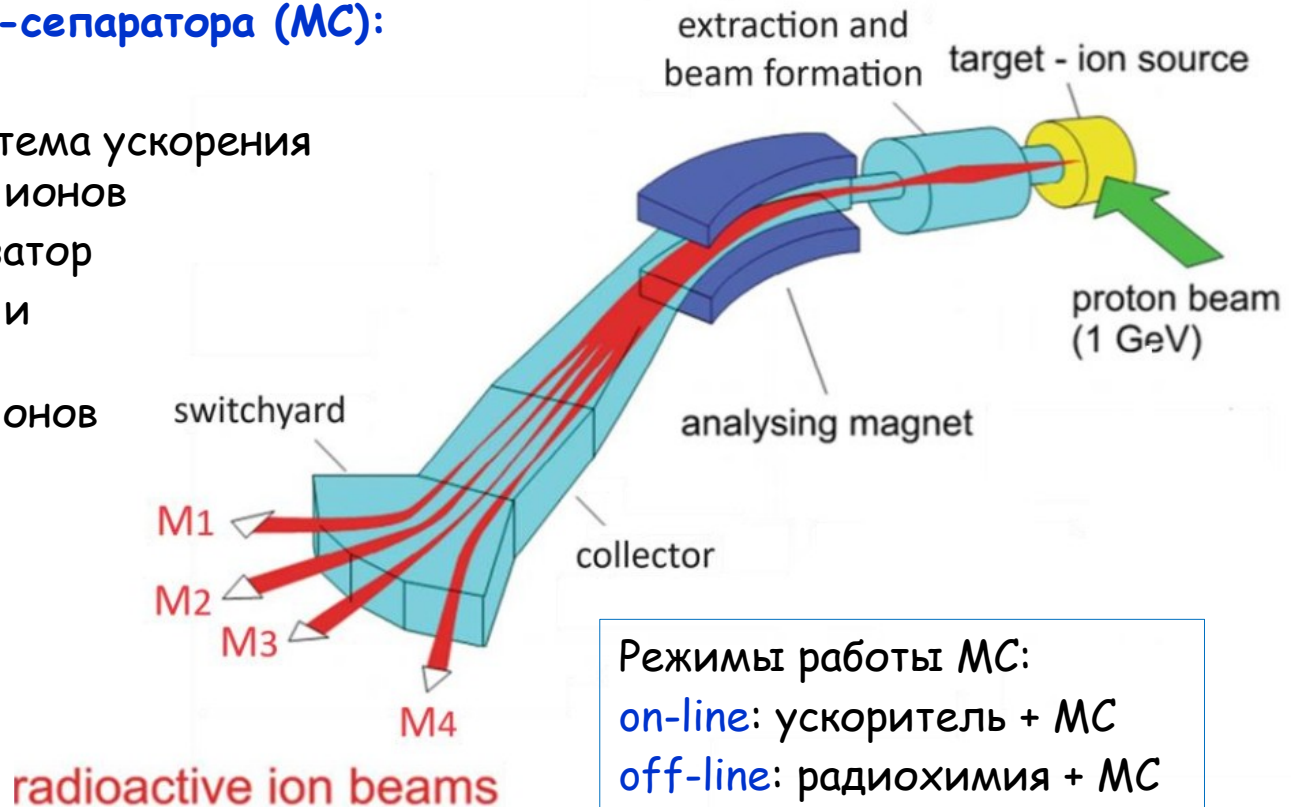
Масс-спектрограмма с преимущественным обогащением изотопом Pd-102 (с 1% до 18%), полученная в магнитном поле 2400 Гс



Метод электромагнитной сепарации (ЭМС)

Основные элементы масс-сепаратора (МС):

- ✓ ионный источник
- ✓ электростатическая система ускорения и формирования пучка ионов
- ✓ магнитный масс-анализатор
- ✓ система формирования и транспортировки пучка масс-сепарированных ионов

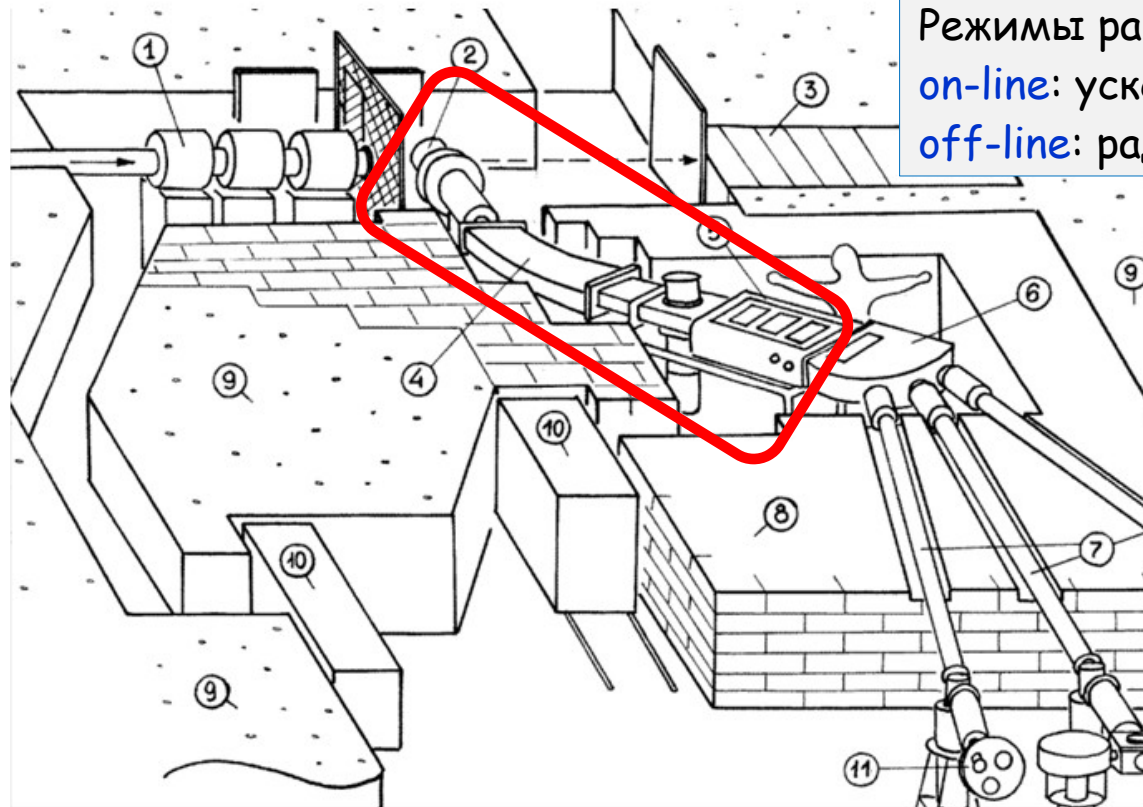


Основные преимущества ЭМС:

- универсальность - разделение изотопов элементов от самых легких до СТЭ
- возможность одновременно разделять и накапливать все изотопы исследуемого элемента
- высокая (почти 100%) изотопная чистота разделения

IRIS facility at PNPI Synchrocyclotron (SC-1000)

IRIS is ISOL-facility working on-line since 1975
with 1 GeV proton beam of PNPI synchrocyclotron



Режимы работы МС:
on-line: ускоритель + МС
off-line: радиохимия + МС

- 1 - трасса протонного пучка, 2 - камера мишени и ионного источника,
3 - блоки гашения протонного пучка, 4 - электромагнит,
5 - коллекторная камера, 6 - камера разводки ионных пучков,
7 - ионопроводы, 8 - защитная стена, 9 - бетонная стена,
10 - откатные двери, 11 - коллектор масс-сепаратора

Ионный источник электронной бомбардировки для получения Pd

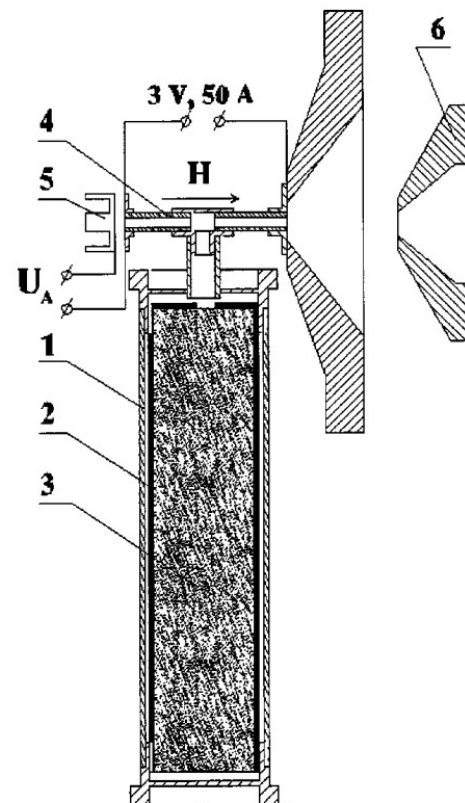
Для получения и разделения изотопов Pd масс-сепараторным методом необходим высокотемпературный ионный источник электронной бомбардировки с отсутствием изоляторов в высокотемпературной области.

Подобный тип ионного источника электронной бомбардировки HTEBIS был ранее разработан на установке ИРИС для получения труднолетучих радионуклидов с высокими потенциалами ионизации: Fe, Co, Cu, Rh, Pd.

Target-ion source efficiency ϵ_{t-is}
of some nuclides produced
from UC_x targets coupled with HTEBIS

Nuclide	$T_{1/2}$ (min)	ϵ_{t-is} (%)	Boiling point (°C)
$^{61}_{Fe}$	5.98	≤ 0.2	2861
$^{62}_{Co}$	13.90	≤ 0.2	2927
$^{68}_{Cu}$	3.75	0.4	2562
$^{69}_{Cu}$	2.85	0.2	2562
$^{109}_{Rh}$	1.33	5×10^{-2}	3695
$^{109}_{Pd}$	4.70	0.1	2963
$^{115}_{Pd}$	0.83	0.25	2963

High Temperature Electron Beam Ion Source (HTEBIS)

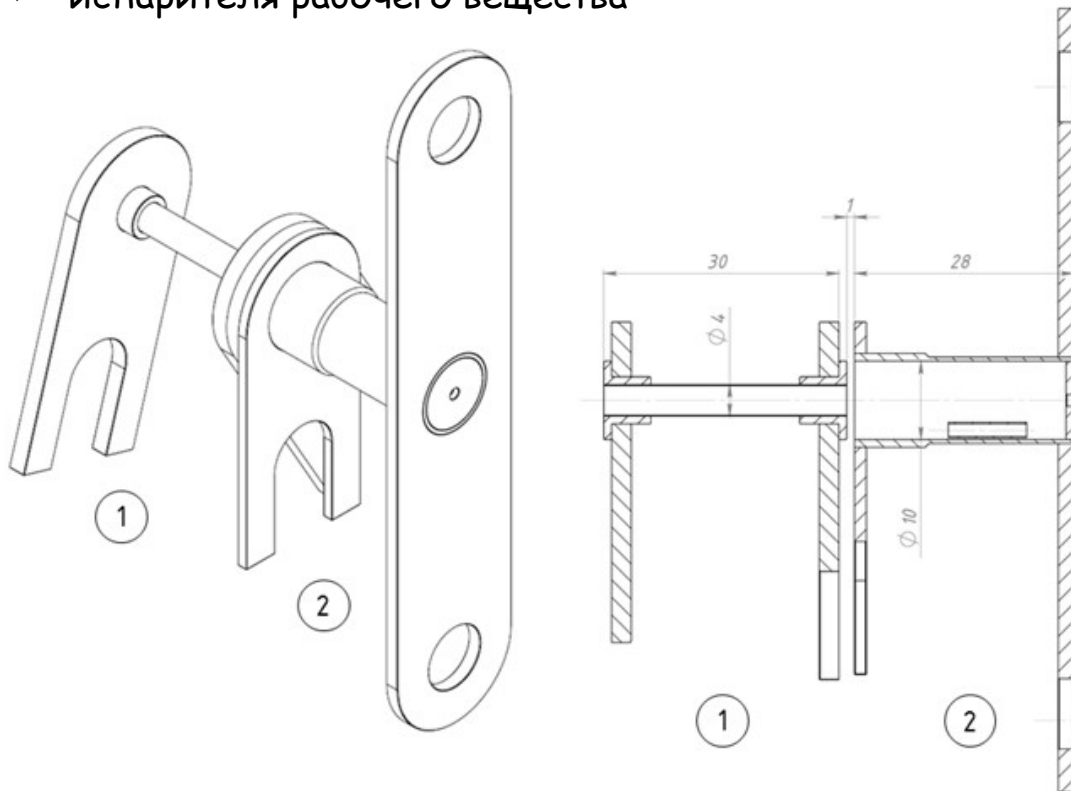


- 1 - tungsten container, 2 - graphite container,
- 3 - uranium carbide blocks or powder,
- 4 - ion source anode tube,
- 5 - cathode, 6 - extraction electrode

Новый ионный источник для получения Pd

Ионный источник состоит из:

- ✓ катода, на внутренней поверхности которого происходит термоэлектронная эмиссия, необходимая для зажигания и поддержания разряда
- ✓ испарителя рабочего вещества



1 - катод, 2 - испаритель (анод)

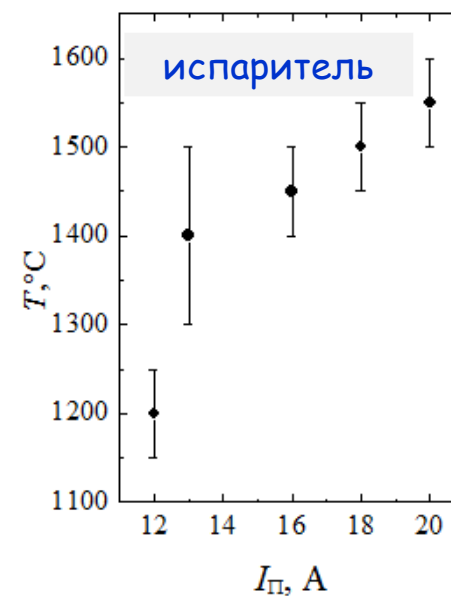
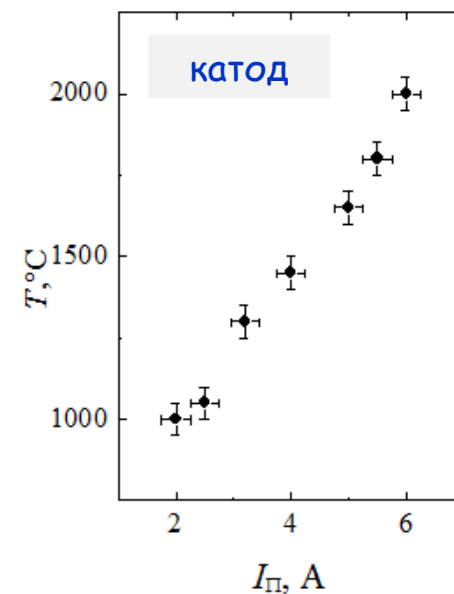
температура катода: 1800 - 2100 °C,
температура анода: 1400 - 1550 °C,
напряжение между катодом и анодом: до 150 В,
разрядный ток: 0,1 - 0,2 А

Ионный источник
в сборке с системой
напуска ксенона



Нагрев ионного источника

Головная часть масс-сепаратора установки
ИРИС с вакуумной камерой ионного источника



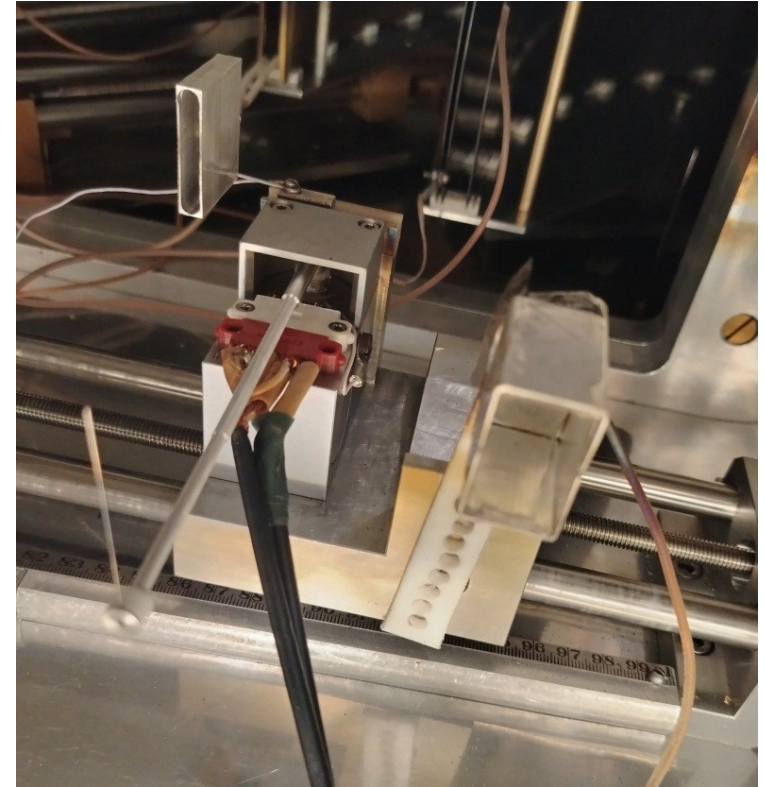
Измерение ионного тока

Коллекторная камера
масс-сепаратора ИРИС



Измерение ионного тока проводились в коллекторной камере масс-сепаратора с помощью цилиндра Фарадея, установленного на передвижной каретке

Устройство блока детектирования ионов, установленного на каретке



Ширина полости цилиндра Фарадея - 5 мм,
высота цилиндра Фарадея - 30 мм.

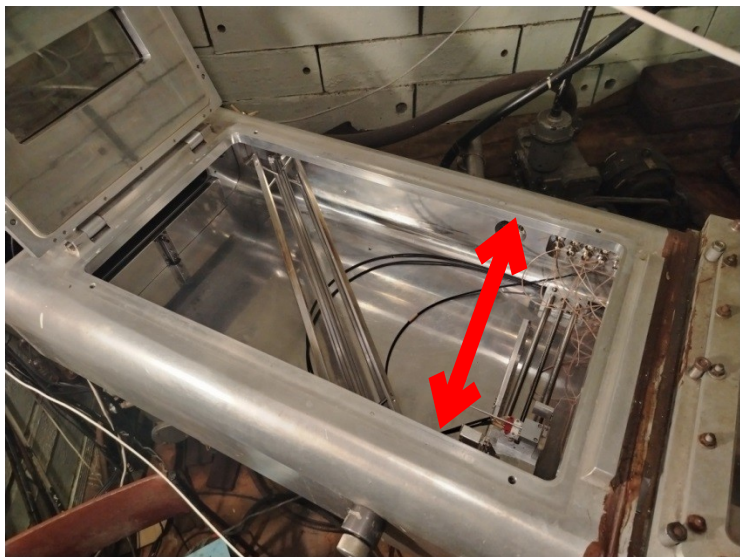
Диапазон передвижения каретки в направлении, перпендикулярном оси масс-сепаратора ≈ 30 см, что соответствует диапазону масс $\Delta M \approx 20$.

Для измерения тока, стекающего с цилиндра Фарадея, использовался спектрометрический усилитель У5-6

Измерение массовых спектров изотопов ксенона

Для чего используется напуск ксенона:

- ✓ для настройки магнита и ионно-оптической системы масс-сепаратора для работы в области масс 107
- ✓ для проверки работоспособности ионного источника электронной бомбардировки
- ✓ для измерения эффективности ионизации ионного источника электронной бомбардировки
- ✓ для отработки методики набора массовых спектров перед проведением работ по разделению палладия

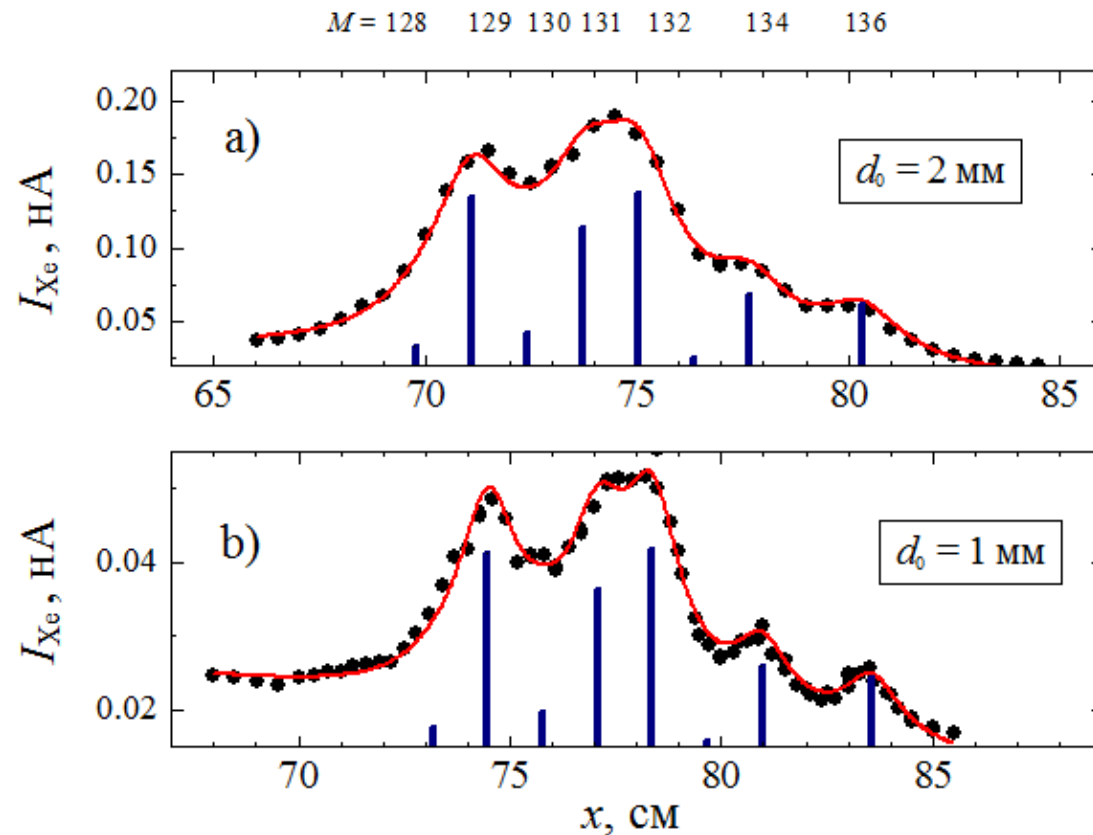


Система напуска ксенона



Массовое сканирование заключалось в передвижении каретки с установленным на ней цилиндром Фарадея в направлении, перпендикулярном оси масс-сепаратора с одновременной записью величины ионного тока.

Массовые спектры изотопов ксенона



d_0 - диаметр выходного
отверстия ионного источника

Для организации сканирования в автоматическом режиме была создана специальная компьютерная программа.

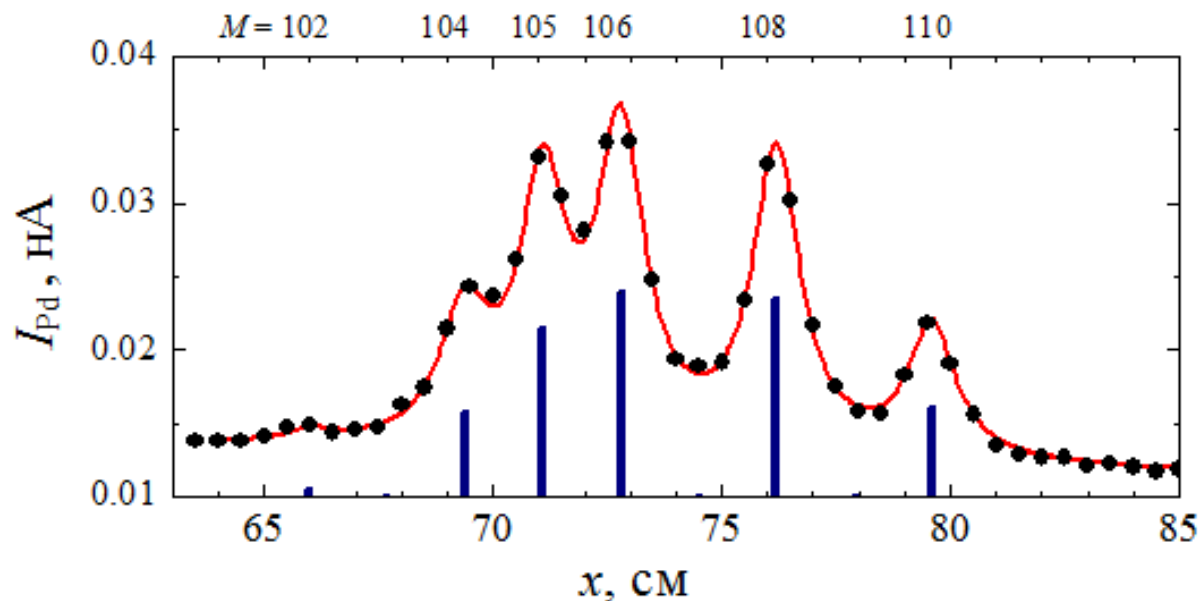
Для управления магнитным полем и сбора данных о магнитном поле и ионном токе использовалась АЦП-ЦАП карта ADLINK PCI-9221.

Для измерения сигнала с датчика Холла, установленного в магните, также использовался высокоточный вольтметр Keithley-2000

Фитирование экспериментальных данных производится суммой лоренцовских функций (с учётом ширины полости коллектора 5 мм).

Для фитирования в качестве относительных амплитуд пиков использовались литературные данные об изотопическом составе природного ксенона.

Разделение природного палладия



В капсулу испарителя была помещена проба природного палладия в виде металлического порошка массой около 20 мг. Время набора массового спектра - 1,5 ч. Шаг сканирования - 3 мм.

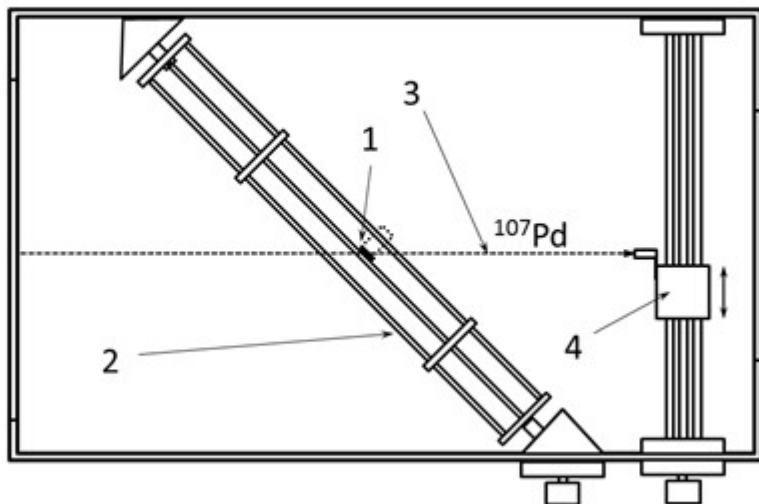
Фитирование экспериментальных данных производится суммой лоренцовских функций (с учётом ширины полости коллектора 5 мм).

Для фитирования в качестве относительных амплитуд пиков использовались литературные данные об изотопическом составе природного палладия.

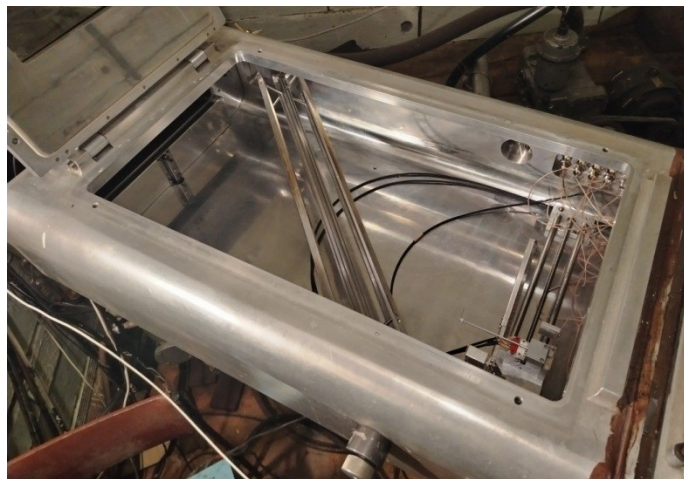
Полученный массовый спектр демонстрирует возможность разделения изотопов палладия на масс-сепараторе ИРИС

Подготовка к отделению Pd-107

Схема отделения Pd-107 от стабильных изотопов палладия



- 1 - коллектор, 2 - поворотная рамка,
3 - траектория пучка ионов ^{107}Pd ,
4 - коллектор на передвижной каретке

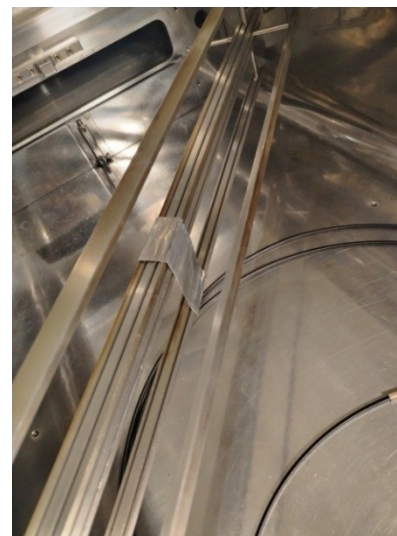


Различные положения поворотного коллектора:

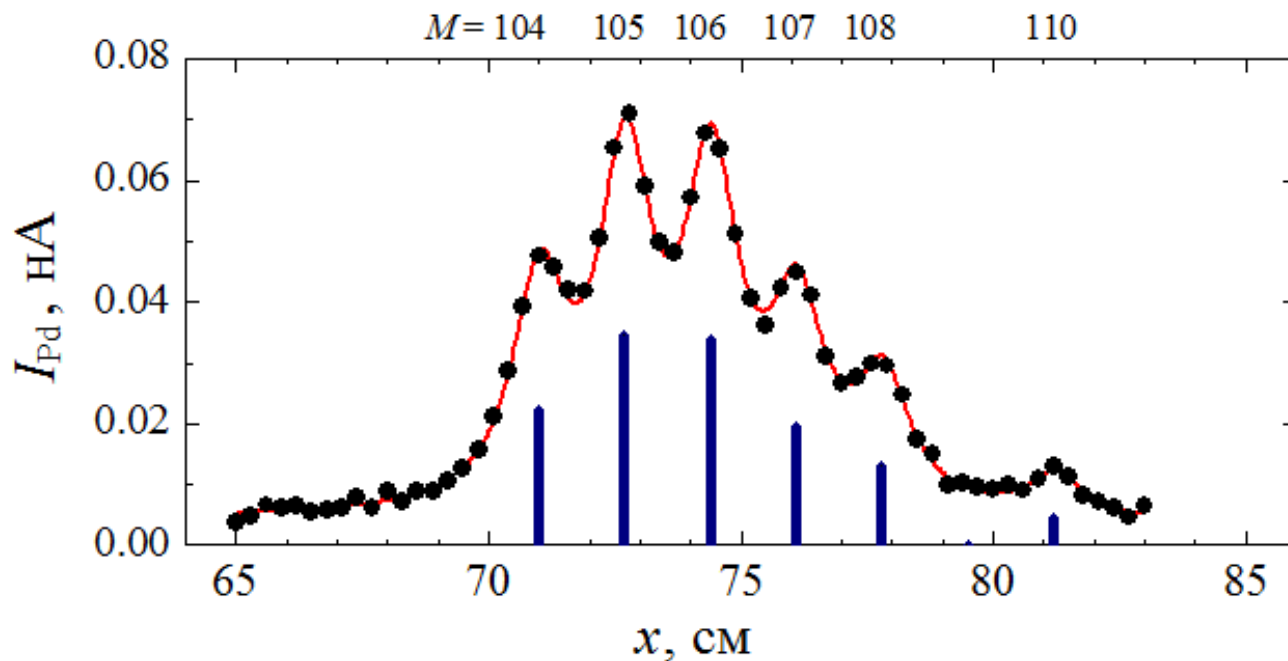
открытое



закрытое



Разделение «реакторного» Pd в «открытом» положении



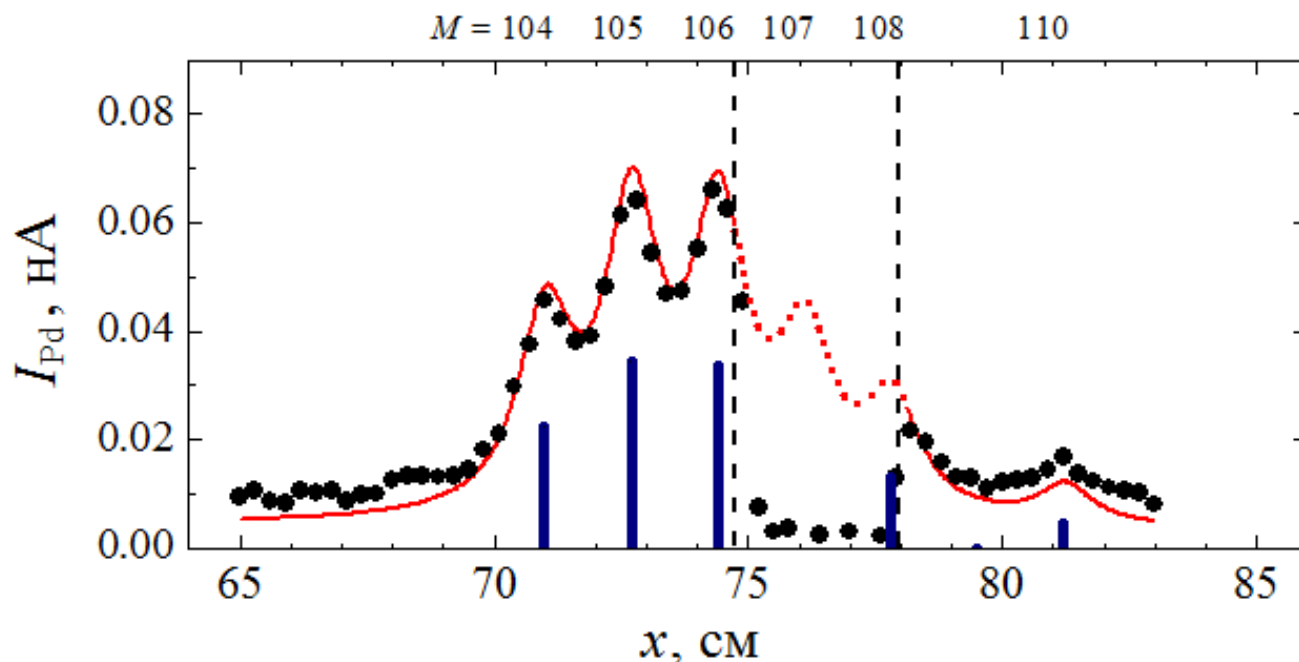
Изотоп	Масса, %
^{104}Pd	17,58
^{105}Pd	26,92
^{106}Pd	26,49
^{107}Pd	15,28
^{108}Pd	10,24
^{110}Pd	3,49

Фитирование экспериментальных данных производится суммой лоренцовских функций (с учётом ширины полости коллектора 5 мм).

Для фитирования в качестве относительных амплитуд пиков использовались литературные данные об изотопическом составе «реакторного» палладия.

В капсулу испарителя была помещена проба «реакторного» палладия в виде металлического порошка массой около 20 мг. Время набора массового спектра - 1,5 ч. Шаг сканирования - 3 мм.

Разделение «реакторного» Pd в «закрытом» положении



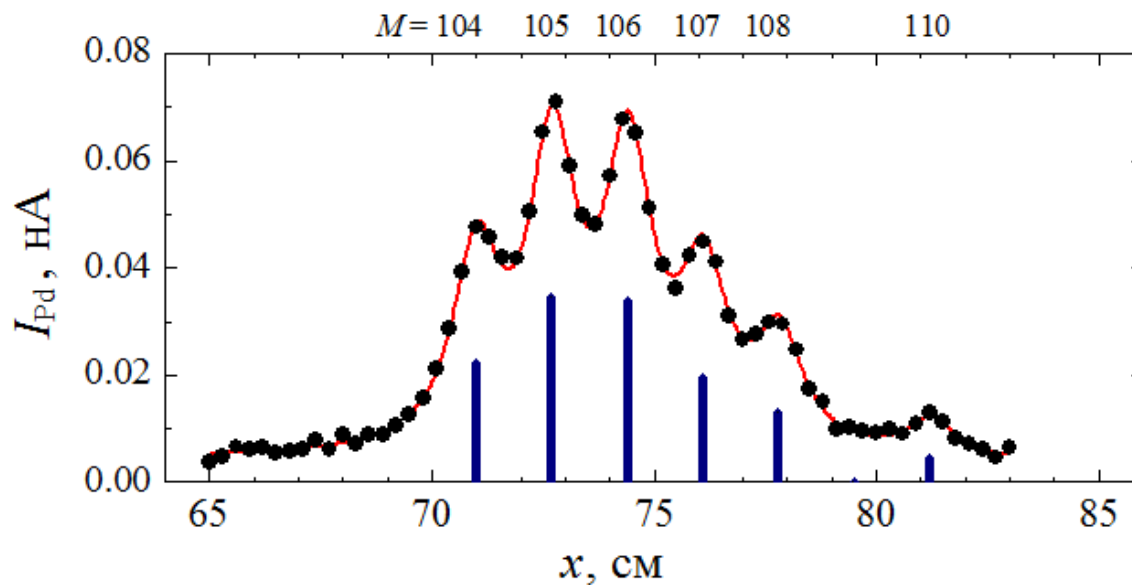
Изотоп	Масса, %
^{104}Pd	17,58
^{105}Pd	26,92
^{106}Pd	26,49
^{107}Pd	15,28
^{108}Pd	10,24
^{110}Pd	3,49

Фитирование экспериментальных данных производится суммой лоренцовских функций (с учётом ширины полости коллектора 5 мм).

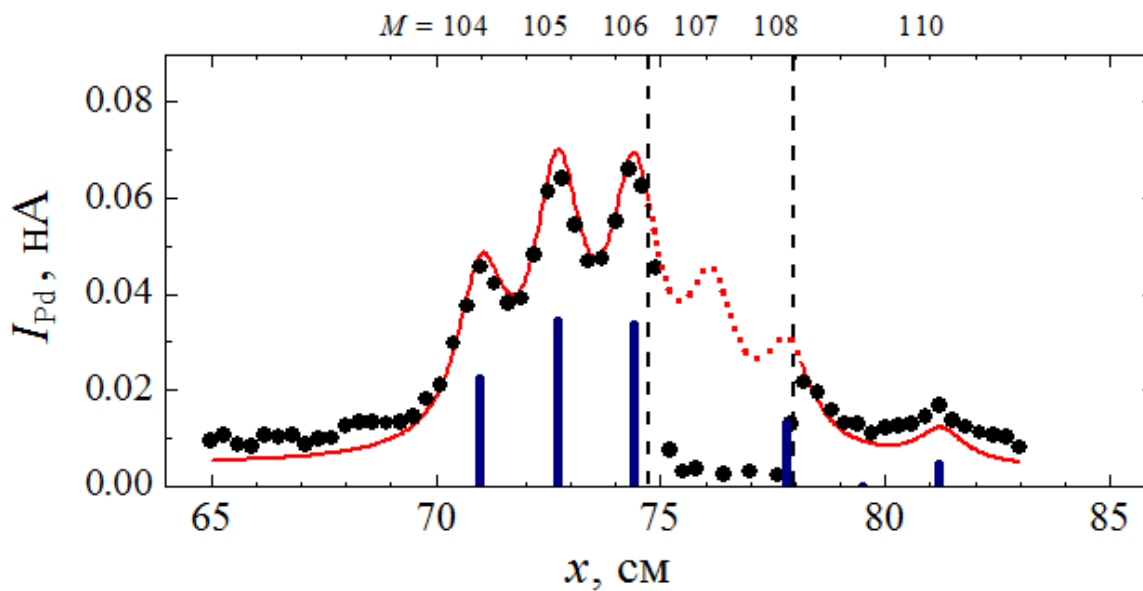
Для фитирования в качестве относительных амплитуд пиков использовались литературные данные об изотопическом составе «реакторного» палладия.

В капсулу испарителя была помещена проба «реакторного» палладия в виде металлического порошка массой около 20 мг. Время набора массового спектра - 1,5 ч. Шаг сканирования - 3 мм.

Разделение «реакторного» Pd

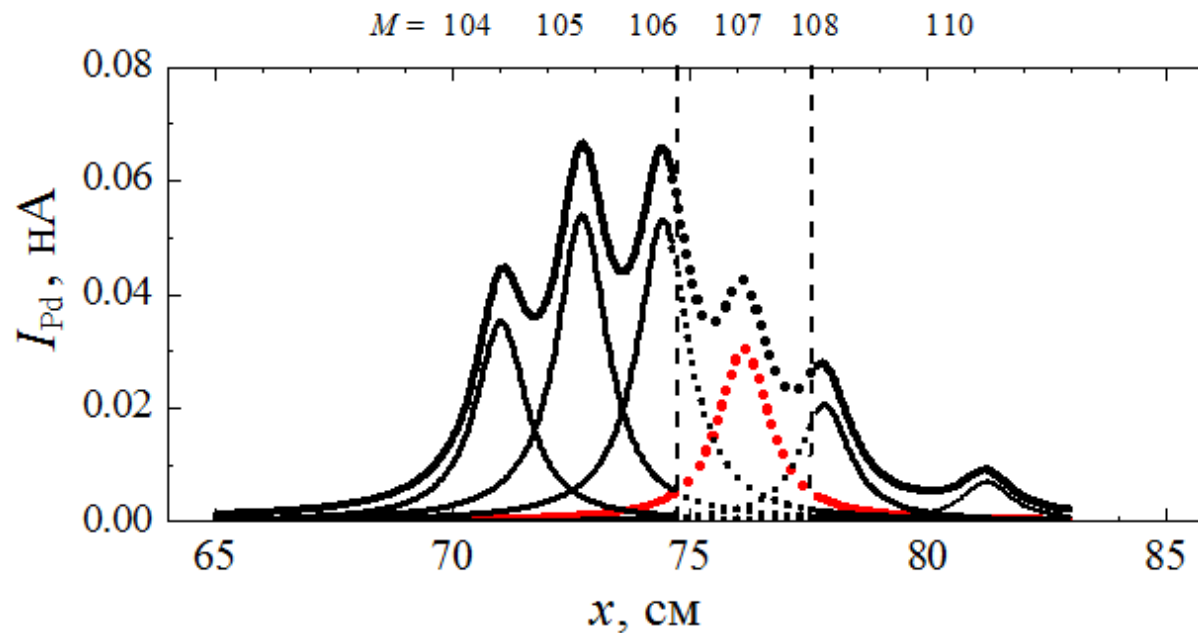


+ ^{107}Pd



- ^{107}Pd

Параметры очистки реакторного палладия



Ширина поворотного коллектора в направлении, перпендикулярном траектории <u>ионов</u>	30 мм	40 мм	60 мм
Коэффициент очистки	4,5	6,2	11
Потери стабильных изотопов <u>Pd</u>	19 %	31 %	49 %
Относительное содержание ¹⁰⁷ <u>Pd</u> в смеси после отделения	4,6 %	4,0 %	3,1 %

Полученный массовые спектры демонстрируют принципиальную возможность отделения Pd-107 от смеси изотопов палладия, входящих в состав ОЯТ

Выводы

В ходе выполнения НИР были проведены следующие работы и получены следующие результаты:

- 1) Была изготовлена новая версия ионного источника электронной бомбардировки.
- 2) Была создана система дозированного напуска микроколичеств ксенона в систему ионного источника для поддержания постоянной величины разрядного тока, необходимой для стабильной работы в течение времени измерения.
- 3) Были проведена оценка и проведены измерения эффективности ионизации атомов ксенона, которые позволяют определить верхнюю границу эффективности ионизации атомов палладия.
- 4) С помощью масс-сепаратора ИРИС было проведено отделение ^{107}Pd от смеси изотопов палладия, входящих в состав отработавшего ядерного топлива.

Работы выполнены в соответствии с Техническим заданием и Календарным планом в полном объеме.

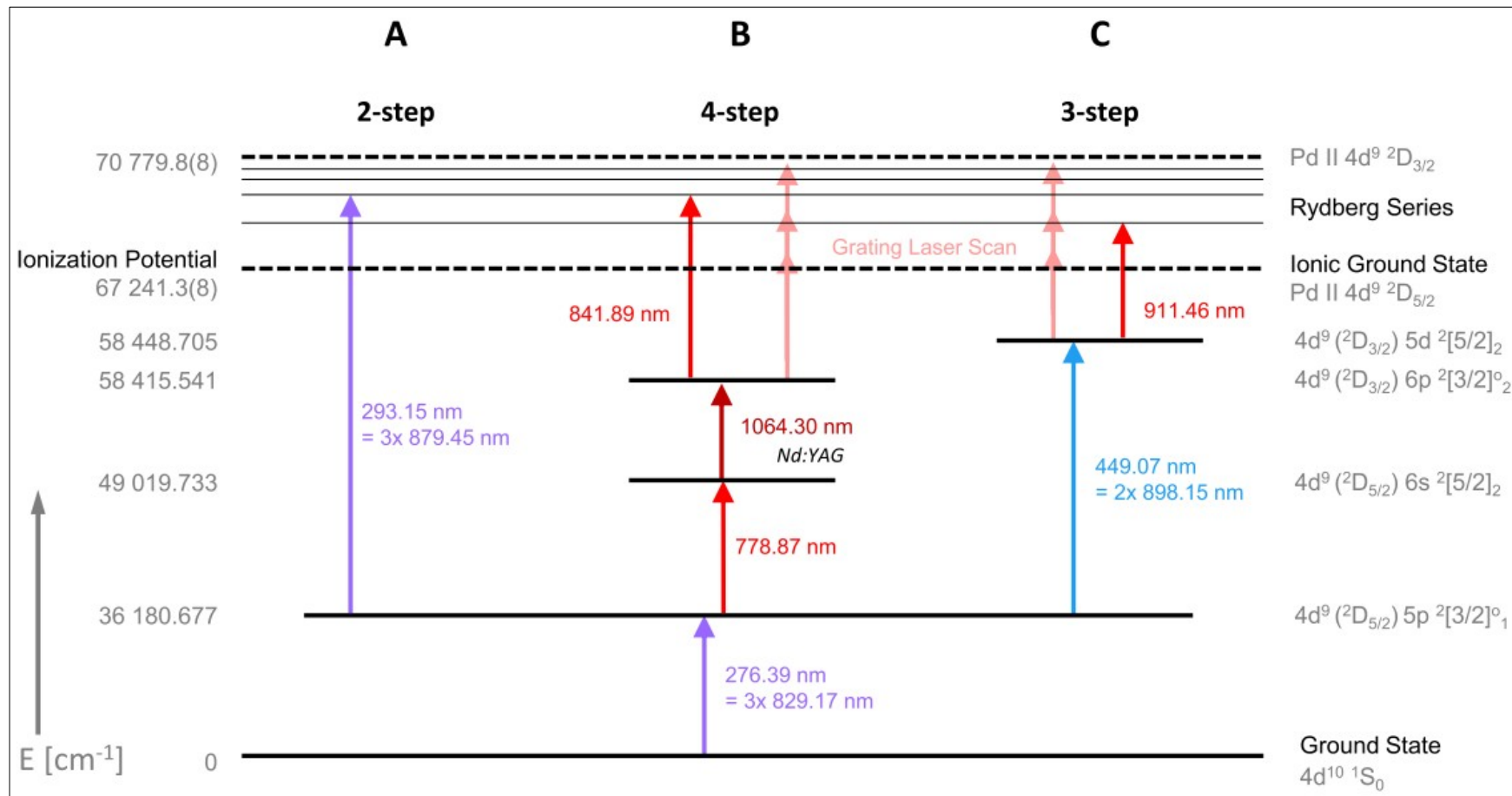
Backup

Перспективы метода масс-сепараторного отделения ^{107}Pd :

- ✓ Величина коэффициента очистки на масс-сепараторе ИРИС невысока и составляет около 4,5 для описанных экспериментальных условий
- ✓ Эта величина обусловлена не самим методом, а невысокой разрешающей способностью используемого масс-сепаратора
- ✓ Увеличение разрешающей способности до уровня $R = 500 - 1000$ приведёт к существенному увеличению степени отделения ^{107}Pd
- ✓ Масштабирование данного метода потребует решения целого ряда нетривиальных физико-технических проблем, т.к. повышение производительности метода за счёт повышения интенсивности ионных пучков может быть ограничено эффектом объёмного заряда
- ✓ Эффект объёмного заряда также негативно влияет на разрешающую способность сепаратора и, следовательно, качество разделения ионов
- ✓ Основная область применения масс-сепараторного метода связана с фундаментальными научными исследованиями и производством радиофармпрепаратов, когда не требуются большие производительности и стоимость продукта не является сдерживающим фактором

High efficiency resonance ionization of palladium

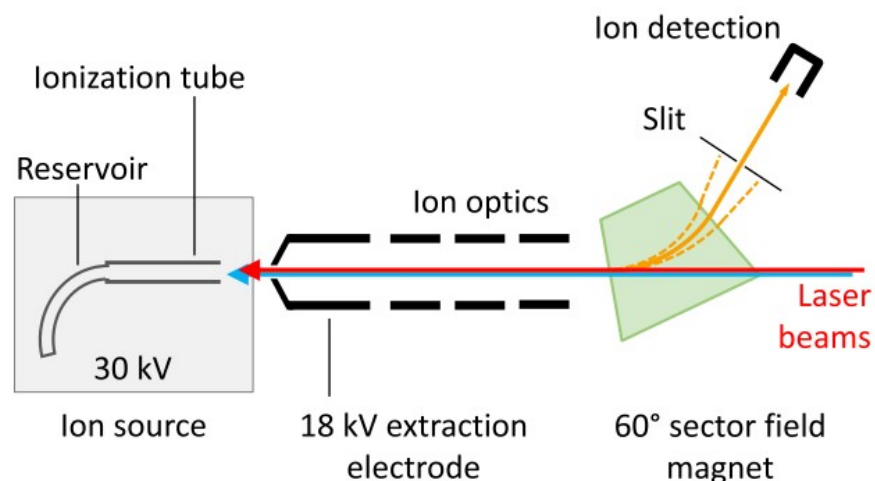
Kron et al., High efficiency resonance ionization of palladium with Ti:sapphire lasers ,
J. Phys. B: At. Mol. Opt. Phys. **49** (2016) 185003



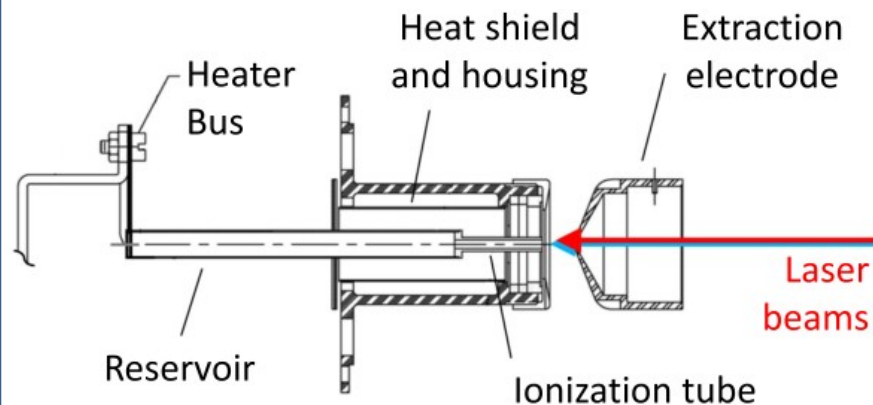
In this work highly efficient resonant ionization schemes were developed for palladium

High efficiency resonance ionization of palladium

RISIKO MS (Mainz University)



ORNL MS (Oak Ridge)

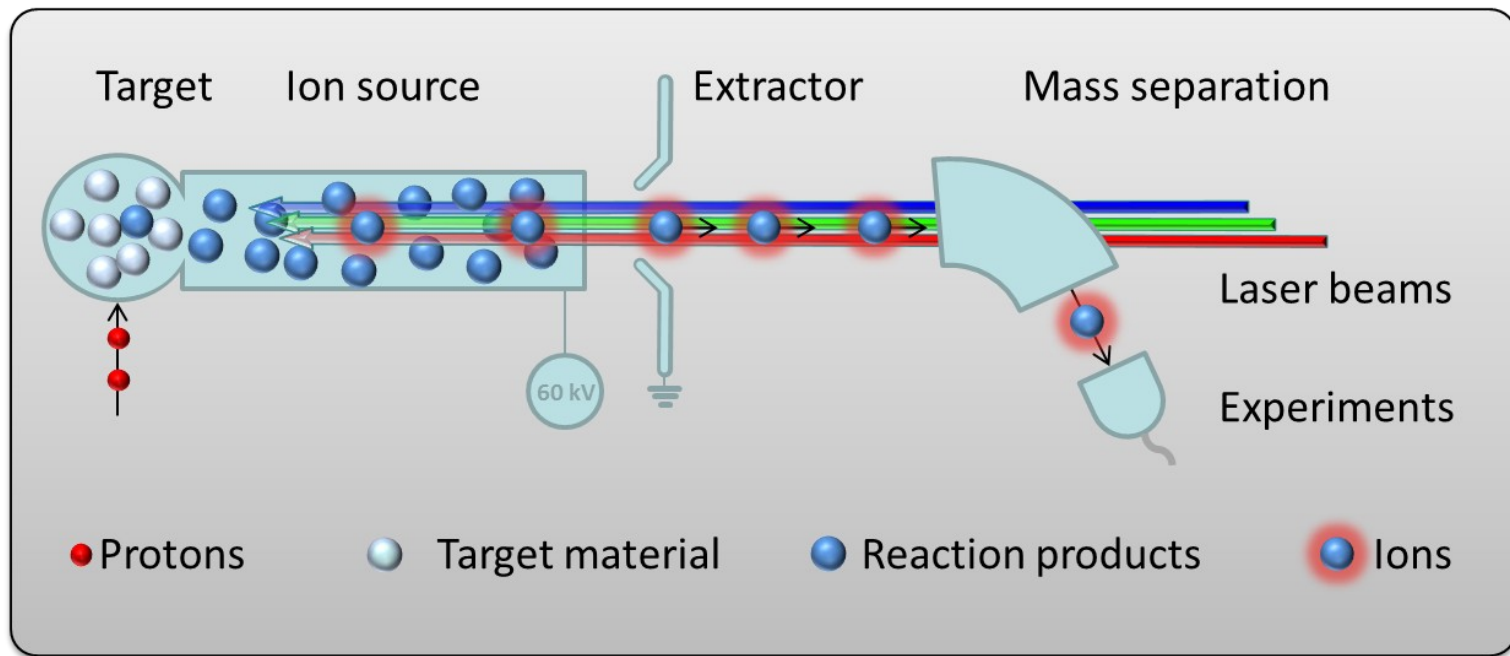


The overall efficiency was carefully investigated using two independent mass separators and laser setups at Mainz University and ORNL, respectively. Very high values of 54.3 (1.4) % and 59.7 (2.1) % respectively, were obtained using the 3-step resonance ionization scheme.

To our knowledge, these are presently the highest efficiency values ever achieved with a resonance ionization laser ion source.

Kron et al., High efficiency resonance ionization of palladium with Ti:sapphire lasers ,
J. Phys. B: At. Mol. Opt. Phys. **49** (2016) 185003

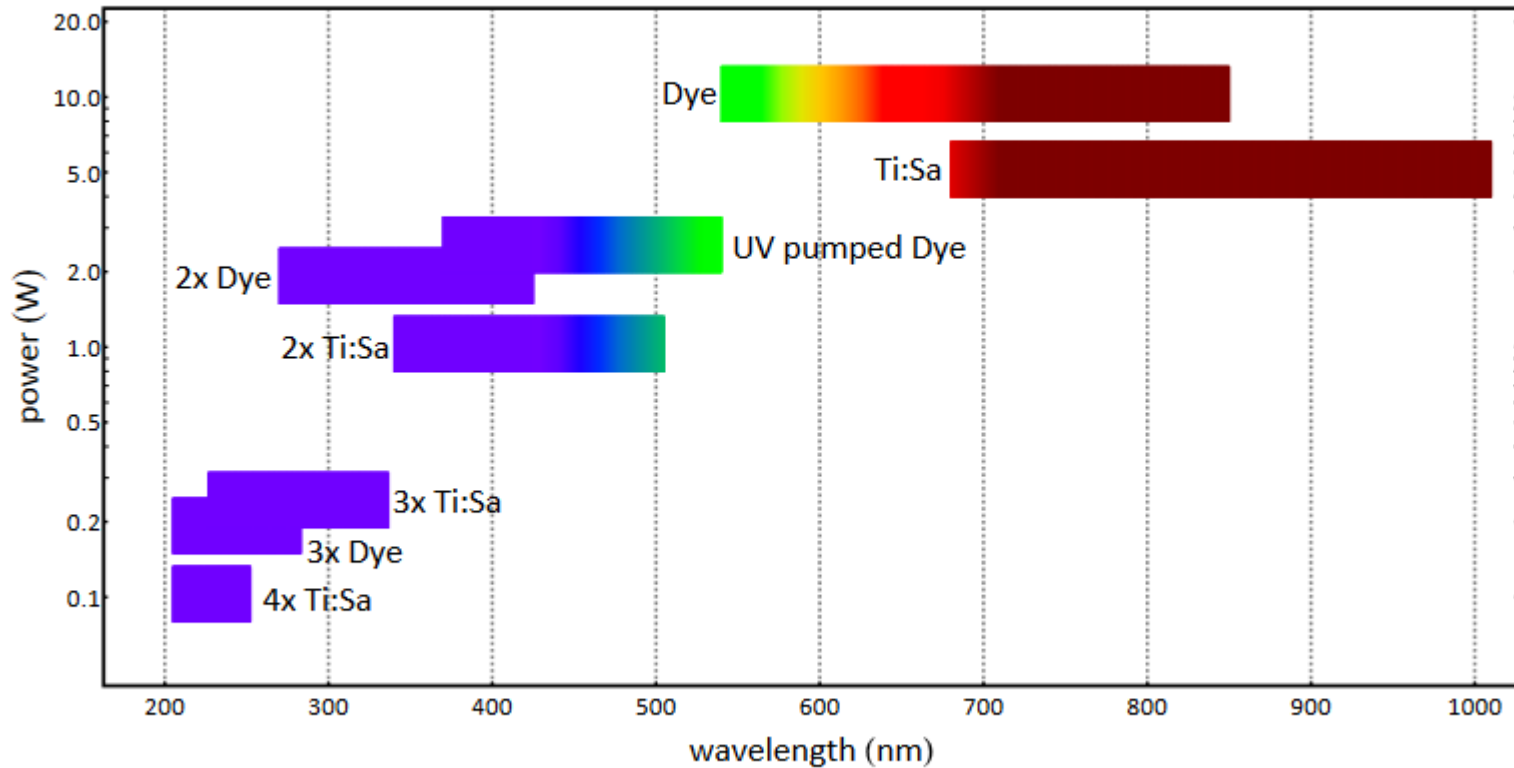
Использование ЛИИ для отделения ^{107}Pd



Использование резонансной фотоионизации в лазерном ионном источнике с последующим разделением по массам в магнитном поле масс-сепаратора позволит на несколько порядков увеличить эффективность ионизации и, следовательно, производительность метода

Dye laser and Ti:Sa laser systems

Comparison of wavelength ranges and powers



The Ti:Sa laser system benefits:

- ✓ Extension the accessible wavelength range to the near infra-red
- ✓ long-term power stability
- ✓ almost maintenance-free operation

Федеральное государственное бюджетное учреждение
«ПЕТЕРБУРГСКИЙ ИНСТИТУТ ЯДЕРНОЙ ФИЗИКИ»
им. Б. П. Константинова
Национального исследовательского центра «Курчатовский институт»

Ориентировочная стоимость модернизации
масс-сепараторного комплекса ИРИС - 100 млн. руб.

Проект программы
модернизации систем ускорительного комплекса
НИЦ «Курчатовский институт» - ПИЯФ
и научных исследований на синхротроне на 2025-2030 гг

Наименование	2025 г.	2026 г.	2027 г.	2028 г.	2029 г.	Стоимость, тыс. руб.
ИРИС	5 250	5 500	11 000	45 500	25 500	92 750
источник питания магнита масс-сепаратора	2 500	2 500				5 000
лазеры (3 шт.) 532нм@50Вт@10кГц@20-40нс (ДМК МС)			11 000	20 000		31 000
лазеры (2 шт.) Ti:Sa 720-960нм@360-480нм@200-240нс с накачкой лазером (ДМК МС)				25 500	25 500	50 000
прокачка для лазеров на красителях (5 шт.)	750					750
трубки из монокристаллического вольфрама для ионных источников (5 шт.)	2 000	3 000				5 000

С НОВЫМ ГОДОМ, ФИЗИКИ!



С НОВЫМ ГОДОМ, ФИЗИКИ!
ПУСТЬ ВАШИ ЭКЕРД ЕСПЕРИМЕНТЫ
А ТЕОГРДА, А СХОДЯТЯ,
БЛЕСТЯШЕ ПОДТВЕРЖДАЮТСЯ!



*С Новым
Годом,
Физики!*

С НОВЫМ ГОДОМ, ФИЗИКИ!
ПУСТЬ ВАШИ ФОРМУЛЫ,
ЭКСПЕРИМЕНТЫ СХОДЯШНО,
ПРИКРЫЯТЫ ПРИНОСЯТ
И ВДОХНОВЕНИЕ!

