

离子回旋共振法同位素分离研究进展

罗岚月 张梦龙 汪耀庭 李和平 姜东君 周明胜

(清华大学 工程物理系 北京 100084)

摘要 离子回旋共振同位素分离(Ion Cyclotron Resonance Isotope Separation, ICR-IS)方法自 20 世纪 70 年代提出以来,受到了世界各国研究者和产业界的广泛关注。本文基于国内外研究者公开发表的有关 ICR-IS 的研究成果,综述了 ICR-IS 方法的基本原理、装置基本结构、产生显著同位素分离效应需要满足的主要约束条件,以及用于不同种类同位素分离的 ICR 理论与实验研究进展,最后简要探讨了推动该方法走向实际工程应用仍需深入研究的关键科学与技术问题。

关键词 同位素分离, 离子回旋共振, 选择性加热, 乏燃料后处理, 非平衡态等离子体, 带电粒子运输

中图分类号 TL25, TL92

DOI: 10.11889/j.0253-3219.2025.hjs.48.240250

CSTR: 32193.14.hjs.CN31-1342/TL.2025.48.240250

State-of-the-art of the study on ion cyclotron resonance isotope separation

LUO Lanyue ZHANG Menglong WANG Yaoting LI Heping JIANG Dongjun ZHOU Mingsheng

(Department of Engineering Physics, Tsinghua University, Beijing 100084, China)

Abstract Since the ion cyclotron resonance isotope separation (ICR-IS) method was proposed in 1970s, it has received widespread attention from researchers and industries around the world. Based on the published results on the ICR-IS in the past few decades, a review is presented in this paper including the fundamental theories of ICR-IS, basic structures of the devices, major criteria for obtaining significant isotope separation effects; and in particular, the recent progress in the theoretical and experimental research fields for obtaining different isotopes using the ICR-IS approach is summarized and discussed. And finally, the key scientific and technological issues in future research for promoting industrial applications of the ICR-IS method are discussed briefly.

Key words Isotope separation, Ion cyclotron resonance, Selective heating, Spent fuel reprocessing, Non-equilibrium plasma, Charged particle transport

离子回旋共振(Ion Cyclotron Resonance, ICR)通常指带电粒子在轴向磁场中回旋运动的同时,受到垂直方向与回旋运动相同频率的交变电场的加速作用,从而使得带电粒子的能量逐渐增大的过程。ICR 技术在核聚变、质谱仪、推进器、同位素分离等领域具有广阔的应用前景。最早以离子回旋共振为

原理的质谱仪可追溯到 20 世纪 40 年代由 Hipple 等^[1]提出的回旋质谱仪(Omegatron),该装置可精确测量离子回旋频率,其名称“Omegatron”亦来自于测定回旋频率(ω)的功能。此后 Wobschall、Anders 等^[2-3]进一步研究了不同种类离子在电磁场中的共振吸收效应;直到 1974 年,Comisarow 和 Marshall^[4]

国家自然科学基金(No.11775128)资助

第一作者: 罗岚月, 女, 1999 年出生, 2021 年毕业于清华大学, 现为博士研究生, 研究方向为同位素分离和低温等离子体非平衡运输

通信作者: 李和平, E-mail: liheping@tsinghua.edu.cn

收稿日期: 2024-06-15, 修回日期: 2024-09-02

Supported by National Natural Science Foundation of China (No.11775128)

First author: LUO Lanyue, female, born in 1999, graduated from Tsinghua University in 2021, doctoral student, focusing on isotope separation and non-equilibrium transports in low-temperature plasmas

Corresponding author: LI Heping, E-mail: liheping@tsinghua.edu.cn

Received date: 2024-06-15, revised date: 2024-09-02

将 Fourier 变换 (Fourier Transform, FT) 技术与 ICR 质谱仪结合, 实现了检测信号由时域到频域的转变。至此, 现代常用的快速 Fourier 变换离子回旋共振质谱仪 (FT-ICR Mass Spectrometer) 基本成形。FT-ICR 质谱仪的主要组成部件包括: 离子产生及输运装置、改进的潘宁离子阱、在离子阱内产生强磁场的磁体、激发离子运动以及探测离子回旋信号的电子系统, 另外, 还应包含将离子频率信息转变为质谱的数据系统。如今, FT-ICR 质谱仪在需要解析大质量混合物的诸多领域有着广泛的应用, 例如蛋白质组学^[5-6]、石油组学^[7-8]分析等。相比于其他类型的质谱仪, FT-ICR 质谱仪的突出优势在于超高质量分辨率, 质荷比范围可达 $15 \leq m/z \leq 10\,000$; 结合适当的质量标定, FT-ICR 质谱仪还可用于确定化合物中元素的构成, 例如燃料清洁燃烧过程中硫或氮化合物等产物的检测^[9]。

在托卡马克装置中, 被环形磁场约束的氘氚离子需要加速到一定能量才能克服原子核之间的势垒发生聚变反应, 而离子回旋共振加热 (Ion Cyclotron Resonance Heating, ICRH) 则是除中性束注入 (Neutral Beam Injection, NBI) 以外唯一能直接加热离子的辅助加热手段。ICRH 的基本原理是将射频波注入到等离子体中, 当射频波频率与离子回旋频率相同时发生共振, 进而通过无碰撞阻尼过程实现能量由波向带电粒子的传递。由于单一离子发生基频共振时, 射频电场能量主要沉积在位于装置边缘的等离子体中, 导致加热效率较低。因此, 在实际应用中, 通常采用先实现少数离子 (如在氘氚等离子体中加入的少量氢离子) 的共振, 然后再通过离子杂化共振使得其余离子获得能量^[10]; 或者是利用二次谐波加热, 不过这种方法的离子能量吸收效率相对较低^[11]。ICRH 装置通常包括射频发生器、传输线、阻抗匹配网络、真空窗以及射频天线。目前, 国际上许多大型托卡马克装置均配备有 ICRH 装置, 以研究该加热方式的能量转换效率及波粒相互作用机制, 例如法国的 Tore Supra^[12] 和国内的东方超环 (Experimental Advanced Superconducting Tokamak, EAST)^[13] 聚变装置均安装有 12 MW 的射频发生器作为主要的辅助加热源, 但两者的频率范围和脉冲时长有所不同。国内学者基于 EAST、中国环流器三号 (HL-3) 等装置, 针对离子回旋加热中的快离子损失测量^[14-15]、等离子体锯齿行为^[16] 等开展了相关研究。

离子回旋共振加热技术还应用于空间推进器中。例如, 美国国家航空航天局 (National Aeronautics and Space Administration, NASA) 研制

的可变比冲磁等离子体火箭 (Variable Specific Impulse Magneto Plasma Rocket, VASIMR), 作为一种用以取代传统化学燃料火箭的大功率电推进器, 其基本原理可简要概括为: 气体推进剂在螺旋波源处电离形成等离子体, 向下游传播过程中受到射频天线加热后, 带电粒子绕磁场线旋转的动能增大, 再通过磁喷管将离子回旋能量转变为轴向动能, 从而实现“加速”的目标^[17]。目前, 尽管实验中的射频加热功率已经达到 81 kW, 但距离实现人类火星之旅所需的能量仍有很大差距, 而限制能量输入的主要原因在于过高的传输线电压等会在其附近产生辉光或电弧放电, 从而导致射频发生器关闭^[18]。另外, 离子回旋共振加热所需的强磁场还会影响火箭其他设备的正常工作, 甚至有可能与地外的磁层产生不必要的力矩作用。因此, 如何消除强磁场对火箭飞行过程带来的负面影响也是提高 VASIMR 性能的研究重点之一。此外, 离子回旋共振现象也存在于对太阳风的探索研究中, 日冕空穴离子 (Coronal Hole Ions) 与离子回旋波的共振作用被认为是产生快速太阳风的一个主要机制^[19]。

类似于质谱仪可以分辨不同质量的粒子, 离子回旋共振方法也可用于同位素分离, 即利用不同质量同位素离子的回旋频率差异, 选择性地加热目标同位素离子以实现共振与非共振离子在空间上的分离, 最终获得高丰度的目标同位素产品。事实上, 目前可用于同位素分离的方法有多种, 并各具特色 (见表 1^[20]), 其中有些方法已经实现工业化应用, 有些方法仍处于研究阶段。限于篇幅, 本文主要以离子回旋共振法同位素分离为对象, 整理了 20 世纪 70 年代以来, 国内外研究者关于离子回旋共振同位素分离方法的公开研究成果, 旨在介绍离子回旋共振同位素分离方法的基本原理, 回顾该方法自提出以来在理论及实验研究方面取得的主要进展, 并在此基础上简要探讨推动该方法走向实际工程应用仍需深入研究的科学与技术问题。

1 离子回旋共振同位素分离原理与装置结构

离子回旋共振同位素分离 (Ion Cyclotron Resonance Isotope Separation, ICR-IS) 方法是利用不同质量的带电粒子在均匀磁场内的回旋频率不同, 通过在垂直磁场方向施加固定频率的交变电场, 当电场频率等于目标同位素离子 (亦称为共振离子) 的回旋频率时, 选择性地加热共振离子, 使其与非共振离子在离开磁场时的回旋半径明显不同, 从而实现目标同位素的富集。在理想情况下, 共振离子在电

表1 目前主要的同位素分离方法对比^[20]
Table 1 Comparisons of major isotope separation methods at the present time^[20]

方法 Methods	基本原理 Basic principles	主要特点 Major characteristics
气体扩散法 Gas diffusion method	在分子泄流条件下,质量轻的分子速度较快,通过微孔的概率更大,从而在多孔介质后浓缩 Under the condition of molecular effusion, lighter molecules move faster and have a higher probability of passing through micropores, thus be concentrated behind the porous medium	应用时间长,技术比较成熟;要求分离元素具有气态化合物;能耗高,分离级数大 This technology is mature and has been applied for a long time; the separated elements are required to have their gaseous compounds; the energy consumption is high with a large number of separation stages
气体离心法 Gas centrifuge method	在离心力场中,不同质量的物质所受的离心力不同,轻、重组分的气体分别富集在转筒的中心轴和器壁附近 In the centrifugal force field, substances of different masses experience different centrifugal forces with lighter and heavier gas components being enriched near the central axis and the wall of the rotating cylinder, respectively	结构成熟,能耗低,寿命长;要求分离元素具有气态化合物 The structure of the system is mature with low energy consumption and long service life; the separated elements are required to have their gaseous compounds
原子蒸气激光同位素分离法 Atomic vapor laser isotope separation method	根据同位素原子在吸收光谱上的微小差别,利用激光进行选择性激发和电离,再采用外加电磁场将目标同位素离子引出 Based on the slight difference in the absorption spectrum of the isotope atoms, the target isotope atoms are selectively excited and ionized by a laser with a specific wavelength, and then, the target ions are extracted under an externally applied electromagnetic field	分离系数高;被分离组分的吸收谱线需要存在同位素位移,需要有满足需求的激光 This technology has a high separation coefficient; an isotope displacement in absorption spectrum is required for the separated atoms; a laser with specified wavelength and power is also necessary
电磁法 Electromagnetic method	带电粒子在磁场中运动时,质荷比不同的离子会有不同的运动半径,从而在空间上分离 When charged particles move in the magnetic field, ions with different mass-to-charge ratios will have different motion radii, consequently, being separated from each other spatially	适用性强,能够分离大部分元素;能耗高,且产量低 This technology has a good versatility for most elements with a high energy consumption and low output
化学法 Chemical method	一定条件下,同一元素的两种化合物相互接触时,该元素中不同同位素在混合物中的分配会发生变化 Under certain conditions, when two compounds of the same element contact with each other, the distribution of different isotopes within the mixture will change	能耗低,设备比较简单;单级分离度小,平衡时间长 This method is applied with a low energy consumption, low single-stage separation coefficient and long equilibrium time
气体动力学法 Aerodynamic method	气体化合物在通过弯曲轨道时,不同质量的同位素会受到不同的离心力 When gaseous compounds pass through a curved path, isotopes with different masses are subjected to different centrifugal forces	相比于气体扩散法,单级分离系数高;能耗高 Compared with gas diffusion method, this approach has a higher single-stage separation coefficient with a high energy consumption
离子回旋共振法 Ion cyclotron resonance method	利用特定频率的外加电场对特定种类的离子进行选择加热,使其具有比其他离子更大的回旋半径,从而实现空间上的分离 Using an external electric field with specific frequency, a certain type of ions is selectively heated, and thus has a larger cyclotron radius than those of other types of ions, and consequently, leading to the spatial separation	分离系数高;对电磁场的稳定性、均匀性要求较高 This method has a high separation coefficient, while simultaneously, there exist high requirements for the stability and uniformity of the electromagnetic field

磁场中的轨迹为一条半径随时间持续增大的螺旋线,而非共振离子的轨迹为半径周期性变化的螺旋线。于是,经过足够长时间的加速后,在磁场尾部将能够收集到丰度较高的目标同位素离子。如图1所示,实现ICR-IS效应的装置通常包括5个主要的部件,即以待分离原料为工质的等离子体源、产生均匀磁场的磁体、产生接近离子回旋频率交变电场的射

频天线、在磁场尾部收集共振离子的收集器以及容纳上述部件的真空室。离子从产生到被收集的主要过程可简述为:

1)待分离原料在等离子体源中产生目标同位素离子及杂质离子。工质放电产生等离子体的方式主要包括微波电离型、表面电离型和电子束轰击型;针对高熔点金属通常采用离子或电子溅射电离方式。

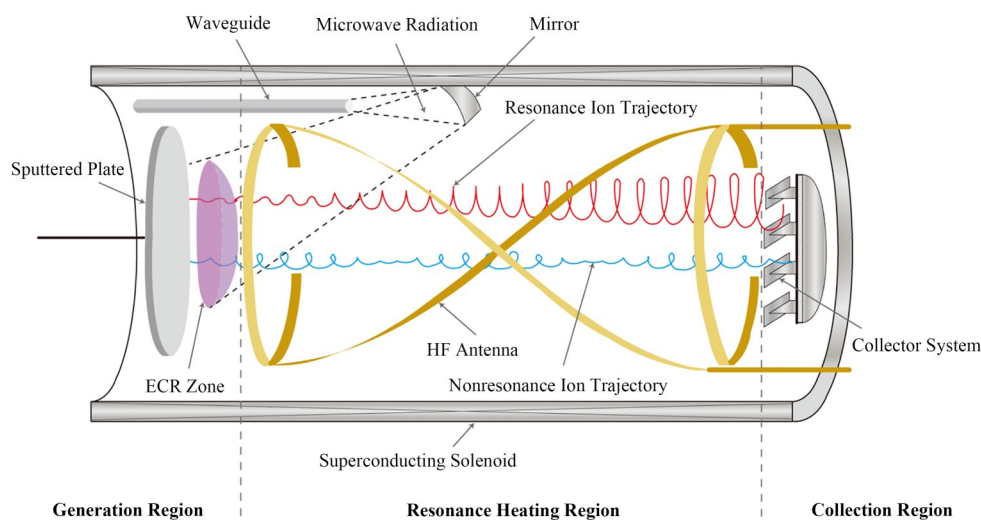


图1 离子回旋共振同位素分离装置示意图^[21]
Fig.1 Schematic diagram of ICR-IS facility^[21]

2)离开等离子体源的离子进入由稳定匀强的磁场和与磁场正交的射频电场构成的电磁场中,通过离子回旋共振加热共振离子,而非共振离子无法持续获得能量,两者回旋半径差异逐渐增大,最终导致空间上的分离。

3)离开电磁场的共振离子和非共振离子被空间中以一定方式分布的尾部收集器分别收集,最终实现目标同位素与非目标同位素的分离。

离子回旋共振同位素分离装置主要分为3个区域,即等离子体区、共振加热区和收集区(图1)。在等离子体区,由电子回旋共振(Electron Cyclotron Resonance, ECR)产生的等离子体撞击到靶板上电离原子,形成包含目标同位素的等离子体;共振加热区包含了产生磁场的超导螺线管和产生交变电场的高频天线(High Frequency Antenna, HF Antenna),等离子体在该区域被选择性加热,产生空间上的分离;进入收集区后,共振和非共振离子最终沉积在处于空间不同位置的收集板上,形成目标同位素丰度较高的“精料”(Product)以及含有较少目标同位素的“贫料”(Waste)。

1.1 等离子体源

为了产生包含待分离同位素的等离子体,首先需要产生包含待分离元素的蒸气,然后再使蒸气离子化。待分离元素熔点的高低决定了气化的方法,对于低熔点的元素(如碱土元素)通常采用热蒸发的方法^[22]。而对于难熔且蒸气压较低的元素则采用溅射方法,即将含待分离元素的材料制成作为阴极的溅射板,在外加数千伏负电压的电场作用下,ECR区域中的部分离子被加速后轰击阴极靶材,使待分离

元素脱离靶板形成金属蒸气^[23];而对于高熔点元素的离子化,常用的方法则有如下两种:

1)微波放电是ICR装置中常用的离子化方式^[21]。如图2(a)所示,通过波导注入接近电子回旋频率的微波,作用于蒸发坩埚上方或溅射靶板下游的区域,与轴向磁镜共同形成ECR区域,加速电子以电离中性粒子^[22]。速度较大的电子首先摆脱磁镜约束从ECR区域逃逸,随后离子也逐渐由源区进入共振加热区,逐渐形成稳定的离子源。放电初期可采用惰性气体启动电子回旋共振过程,产生用于轰击靶板的离子及约束在ECR区域中的电子,随后惰性气体离子逐渐逃逸,稳定放电时ECR区域以待分离元素离子为主。

2)另一种离子化的放电方式是在轴对称系统中,待分离同位素金属作为杆状阴极,外侧环绕同轴圆柱型阳极,电极系统由隔离板支撑,在径向电场和轴向磁场作用下,由注入气体启动电离后,金属原子由于自溅射效应不断脱离阴极靶材,并电离产生待分离元素的离子^[24]。根据电磁场的相对方向该等离子体源称为交叉场源(Source with Crossed Fields, SCF)。由于SCF获得的放电等离子体仅能达到准静态,因而无法获得完全稳定的离子流。改进的稳态交叉场源(Stationary Source with Crossed Fields, SSCF)具有与SCF相似的同轴电极系统,中心轴线上分布有棒状阴极,在外层真空室区域环绕多层圆柱形阳极,能够在低气压(1.33 Pa)下产生密度较高的离子(10^{12} cm^{-3}),而不同的是,SSCF增加了电极厚度,优化了电极形状,并增加了水冷通道(图2(b)),从而有效地降低了热负荷,因而有望实现更加稳定的放电^[25]。

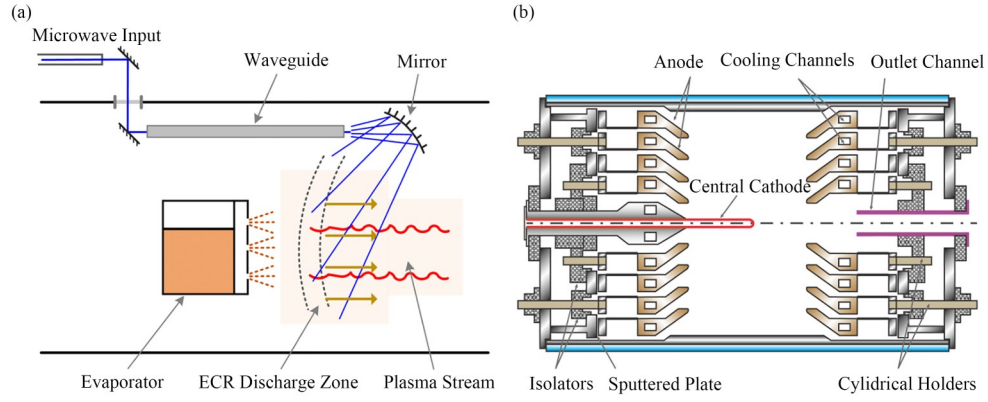


图2 微波放电等离子体源^[22](a)和稳态交叉场等离子体源^[25](b)结构示意图
Fig.2 Schematic of the microwave discharge plasma source^[22] (a) and structural diagram of the stationary source with crossed fields^[25] (b)

1.2 离子共振加热

实现离子共振加热的一个基本条件是在共振加热区产生均匀稳定的磁场和射频电场。常见的亥姆霍兹线圈在几十厘米的真空室内最高仅能产生 2 000 Gs 的均匀磁场,且磁场均匀性受到线圈装配和制造误差的影响^[26-29]。离子回旋共振一般需要特斯拉量级的磁感应强度,而且对磁场均匀性有更高要求(磁场均匀度通常要求为 1% 量级或更高),在这种情况下则需要使用液氦或液氮冷却的超导线圈,这也是 ICR-IS 方法一个主要的功耗来源。而射频共振电场的产生方式主要有两种:直接法和感应法,前者的特点是结构简单,但需要接触等离子体,因此会干扰共振加热过程;后者则是通过射频天线在空间激发交变电场,但需要控制离子在磁场中的回旋半径,以免粒子溅射到天线表面腐蚀材料^[30]。目前,可供选择的射频天线的常见类型包括螺旋天线(Helical Antenna)和螺线管天线(Solenoidal Antenna),前者激发的电磁场频谱轴向波数宽度窄,有利于提高加热选择性;而后者激发的高频电场均匀度好,但能量注入效率低^[31]。

由电磁学理论可知,在稳定的匀强磁场 $\vec{B}$ 中,质量为 m_s 、电荷量为 q_s 的带电粒子(记为 s 粒子)将沿磁场方向做匀速直线运动,同时在垂直于磁场方向以固定频率 Ω_s 做半径为 R_s 的回旋运动,即:

$$R_s = \frac{m_s v_{\perp}}{q_s B} \quad (1)$$

$$\Omega_s = \frac{q_s B}{m_s} \quad (2)$$

式中: B ($|\vec{B}|$) 为磁感应强度的大小; $v_{\perp}$ 为 s 粒子的速度 ($\vec{v}$) 在垂直于磁场方向的速度分量,即横向速度分量。由式(1)可知, s 粒子的回旋半径 (R_s) 与 $v_{\perp}$ 成正

比,且 $v_{\perp}$ 可以表征 s 粒子在垂直于磁场方向的动量,也可反映当其沿磁场方向的运动速度 ($v_{\parallel}$, 即轴向速度分量) 保持基本不变时的能量。若在垂直于磁场的方向上存在交变电场,且电场频率等于离子回旋频率 (Ω_s) 时, s 粒子将与电场发生共振,在 $v_{\perp}$ 逐渐增大的同时,导致其回旋半径 (R_s) 也逐渐增大,这在理论上为实现分离具有不同质量的带电粒子提供了可能^[32]。

在稀薄等离子体条件下(对应的等离子体工作气压约小于 0.1 Pa^[33]),由于粒子的平均自由程远大于系统的特征尺度,从而在研究粒子运动时,可以忽略粒子之间的碰撞及其所导致的空间电场畸变,认为 s 粒子仅受到外加交变电场和磁场的作用,即所谓的单粒子模型。如图 3 所示,匀强磁场 $\vec{B}$ 沿 z 方向,交变电场 $\vec{E}$ (幅值为 $E = |\vec{E}|$ 、角频率为 ω) 位于 x - y 平面内。假定 s 粒子从坐标原点 (O) 出发,以恒定速度 ($\vec{v}$) 沿 z 方向运动,则其运动方程为^[20]:

$$m_s \frac{d^2 x}{dt^2} = eB \frac{dy}{dt} + \epsilon_x eE \cos(\omega t) \quad (3)$$

$$m_s \frac{d^2 y}{dt^2} = -eB \frac{dx}{dt} + \epsilon_y eE \sin(\omega t) \quad (4)$$

$$m_s \frac{d^2 z}{dt^2} = 0 \quad (5)$$

式中: e 为基本电荷量; ϵ_x 和 ϵ_y 分别为在 x 和 y 方向上电场分量的系数;在单粒子模型中,由于忽略了等离子体对空间电场的影响,则可取 $\epsilon_x = \epsilon_y = 1$ 。若 s 粒子为共振离子,则其轨迹为半径逐渐增大的螺旋线,即满足^[20]:

$$x^2 + y^2 = \left(\frac{E}{B} t \right)^2 = R_s^2 \quad (6)$$

当非共振离子与共振离子的相对质量差 $\delta = (m - m_s)/m_s$ 很小时,非共振离子的运动轨迹方

程为:

$$\begin{aligned} x^2 + y^2 &= \left(\frac{2E}{\delta \cdot \Omega_s B} \right)^2 \sin^2 \left(\frac{1}{2} \delta \cdot \Omega_s t \right) \\ &= R_L^2 \sin^2 \left(\frac{1}{2} \delta \cdot \Omega_s t \right) \end{aligned} \quad (7)$$

式中: R_L 为非共振离子周期性变化的回旋半径的最大值。在同位素分离中, 为了实现共振离子和非共振离子的有效分离, 需要满足 $R_s > R_L$ 。由式(6)和(7)可知, 对应的离子运动时间应满足 $t > \frac{2}{\delta \cdot \Omega_s}$ 。

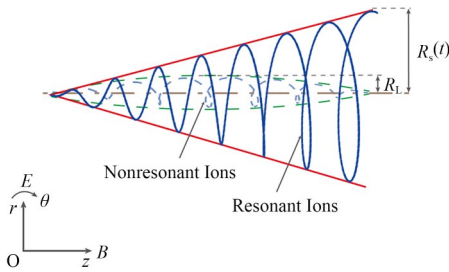


图3 基于单粒子模型的共振与非共振离子轨迹示意图^[20]
Fig.3 Schematic of the resonant and non-resonant ion trajectories based on the single-particle model^[20]

上述的理论推导是在基于磁场稳恒、射频电场频率恒定, 以及不考虑粒子间碰撞导致的能量转移等假定的理想条件下得到的。在实际的物理设计中, 需要对 ICR-IS 装置的参数提出相应的限制条件以尽可能接近上述理想条件。若记共振离子和非共振离子的质量分辨率为 $(\Delta M/M)$, 共振频率为 ω_{ci} , 则可给出以下参数的约束条件^[21]:

1) 由式(2)可知, 共振频率与磁感应强度成正比, 因此, 磁感应强度的波动应小于质量分辨率, 即磁场均匀度应满足^[21]:

$$\frac{\Delta B}{B} \ll \frac{\Delta M}{M} \quad (8)$$

2) 由单粒子模型分析可知, 由于非共振离子回旋半径呈周期性变化, 因此, 为了实现共振与非共振离子半径的明显区分, 达到理想的分离效果, 离子在电磁场中的运动时间应远大于非共振离子半径变化周期。于是, 离子源出口距收集板的轴向距离(L)应满足^[21]:

$$\frac{2\pi v_{\parallel}}{L\omega_{ci}} \ll \frac{\Delta M}{M} \quad (9)$$

式中: $v_{\parallel}$ 为沿磁场方向运动速度, 又称作轴向速度; L 为离子从源出发到被收集运动的轴向长度。在工作参数(包括等离子体初始参数和电磁场参数)给定的条件下, 式(9)也决定了 ICR-IS 装置的最小轴向长度。

3) 等离子体中离子间碰撞频率应满足^[21]:

$$\frac{v_{ii}}{\omega_{ci}} \ll \frac{\Delta M}{M} \quad (10)$$

其中: 离子-离子碰撞频率为 $v_{ii} \approx 5 \times 10^{-7} n_i / (T_i^{3/2} A^{1/2})$, n_i 为离子数密度(cm^{-3}), T_i 为离子温度(eV), A 为离子质量数。由此可知, 对于特定的同位素, 上述对于离子间碰撞频率的要求主要限制了等离子体的密度。

4) 由多普勒效应可知, 离子的轴向速度展宽会引起回旋频率的变化。因此, 限制回旋频率的多普勒展宽对于提高不同同位素离子的选择性十分重要。在通常情况下, 由于等离子体中离子的轴向速度展宽(Δv_z)与离子温度(T_i)成正比; 也就是说, 离子温度越高, 多普勒效应越显著, 分离效果越差。因此, 从等离子体源出射的离子初始速度分布应满足^[21]:

$$\frac{k_z \Delta v_z}{\omega_{ci}} \ll \frac{\Delta M}{M} \quad (11)$$

式中: k_z 为轴向波数; Δv_z 为轴向离子速度分布。

从以上约束条件可知, 相对质量差越大的同位素离子越易分离, 但低质量数的同位素大多已有较为成熟的分离方法^[34-36], 因此, ICR-IS 方法的期望目标是一些难熔金属元素, 其质量数一般在 100 以上, 相应的质量分辨率一般在 1% 左右, 这也对实际的 ICR-IS 装置的参数设计提出了较高的要求。比如, 装置长度应足够大以实现共振与非共振离子的完全分离; 装置应有较长的共振加热区以降低多普勒展宽; 在满足生产需求的同时, 应尽可能降低等离子体密度以减小由于高密度带来的碰撞能量损失; 在保证共振离子与非共振离子在回旋半径上具有显著区分度, 即磁场强度大小和空间均匀度足够的同时, 应尽可能缩小尺寸(如采用超导磁体)以减小整个装置的体积和能耗; 射频电场的频率应保持足够稳定以保证同位素分离的效果; 整个装置应保持足够的真空度以减少粒子(包括背景中性粒子和带电粒子)间的碰撞等。

1.3 离子收集

如图4所示, ICR-IS 收集装置主要由挡板、富集板和尾料板组成, 一般置于等离子体流下游, 在装置尾端形成栅极结构, 栅极之间的距离一般为共振离子回旋半径的 1~1.5 倍。平行于磁场方向的富集板选用耐离子轰击、溅射效应小的材料制成(如石墨、不锈钢等), 同时具有沉积待分离元素的良好性能。由于受选择性加热的共振离子回旋半径明显大于非共振离子的回旋半径, 因此, 通过石墨挡板后可轻易打在富集板上, 而非共振离子则只有小部分沉积在富集板上, 大多数留在后方的尾料板上。垂直于磁

场方向的挡板用于避免收集板受到等离子体流直接撞击,还可以减少沉积在富集板上的非共振离子及中性粒子。另外,在富集板上施加正阻滞电势(电压通常为几十伏),可进一步降低动能较小的非共振离子沉积在富集板上的概率,提高产品丰度,但这在一定程度上也会造成共振离子的产量损失。

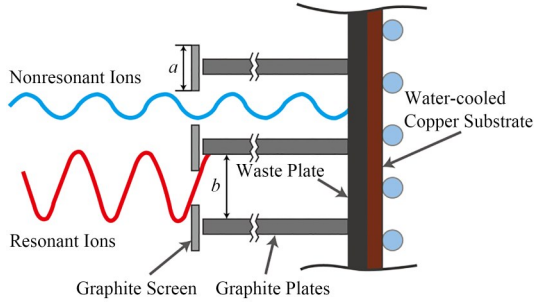


图4 ICR-IS收集装置示意图^[37]
Fig.4 Schematic diagram of the collecting system of ICR-IS^[37]

收集装置对目标同位素的提取效率由收集系数 $\Gamma_c = \tau/G$ 表征,其中: τ 表示沉积在富集板上的目标同位素通量, G 表示入射收集系统的目标同位素通量^[37]。在离子回旋共振过程中,共振频率会影响离子的选择性和收集效率,从而影响收集系数。此外,收集系数还受收集装置几何参数,如挡板高度、收集板间距等多种因素的影响,反映了ICR-IS装置产能的大小^[37-38]。若不考虑富集板的厚度及阻滞电势的影响,当富集板间距小于目标同位素离子回旋直径时,收集系数可粗略估计为^[37]:

$$\Gamma_c = \frac{b-a}{b} \quad (12)$$

式中: b 为富集板间距; a 为挡板高度(图4)。在实际的ICR-IS过程中,由于离子初始的轴向速度分布导致了不同的共振加热时间,从而使得到达收集装置时的离子存在横向速度($v_\perp$)分布。若假设 s 离子的横向速度分布达到了热平衡,即分布函数^[37]:

$$f_\perp = n_s \frac{m_s}{2\pi k_B T_\perp} \exp\left(-\frac{m_s v_\perp^2}{2k_B T_\perp}\right) \quad (13)$$

式中: n_s 为离子数密度; $T_\perp$ 为等效横向离子温度,表征离子的横向速度分布; k_B 为 Boltzmann 常数。离子的平均回旋半径为 $r_L^* = \sqrt{2k_B T_\perp / m} / \omega_{ci}$,当富集板间距等于平均离子回旋直径,即 $b = 2r_L^*$ 时,若不考虑挡板高度,则认为回旋直径大于板间距的离子全部沉积在富集板上,其在入射目标同位素离子中的占比为^[37]:

$$q = \int_{b/2\omega_{ci}}^{\infty} f_\perp 2\pi v_\perp dv_\perp \quad (14)$$

除了回旋半径较大的离子外,由于受到离子间

碰撞及初始位置等影响,回旋半径较小的离子也有可能落在富集板上,根据速度分布函数计算出回旋半径介于 $0 \sim b/2$ 的离子的平均回旋半径 $\bar{r}_L$,从而可估计该部分共振离子沉积在富集板上的比例为^[37]:

$$q_1 = \frac{2\bar{r}_L}{b} \quad (15)$$

因此,在不考虑挡板高度的情况下,ICR-IS装置的收集系数为 $\Gamma_c = q + q_1$;而在考虑挡板高度的情况下,装置的收集系数可估计为 $\Gamma_c = (q + q_1)(1 - a/b)$ ^[37]。

2 离子回旋共振同位素分离的研究进展

2.1 理论研究进展

尽管对于ICR-IS方法的理论研究以提高分离效率为最终目标,但目前的研究工作仍然侧重于对同位素分离基本过程和特性的初步研究。研究表明,电磁场的空间分布、收集板的几何结构及阻滞电势、离子速度分布等诸多因素均会对目标同位素的分离特性产生影响。Karchevskii 和 Potanin 在假设电场为理想的沿轴向传播圆极化波,且离子横向速度的初始分布为 Maxwell 分布的条件下,计算得到的收集板上的目标同位素丰度与假定离子横向速度在收集板入口处达到热平衡(即 Maxwell 分布)时得到的收集板目标同位素丰度明显不同^[39-40]。Potanin 则指出,当离子轴向速度的初始分布不同时,如满足低速范围内与轴向速度成正比的非 Maxwell 分布(式(16),图5,分布1)和偏移半 Maxwell 分布(式(17),图5,分布2):

$$f_z(V_z) = \frac{mV_z}{kT_z} \exp\left(-\frac{mV_z^2}{2kT_z}\right) \quad (16)$$

$$f_z(V_z) = \begin{cases} 2\left(\frac{m}{2\pi kT_z}\right)^{1/2} \exp\left(-\frac{m(V_z - V_{0z})^2}{2kT_z}\right), & V_z > V_{0z} \\ 0, & V_z < V_{0z} \end{cases} \quad (17)$$

计算得到的目标同位素加热效率差异并不显著(图5)^[41]。另外,轴向速度的等效温度 T_z 升高会导致离子加热效率的降低^[42]。受等离子体的集体效应及射频天线结构影响,离子受到的电场并非理想的圆极化交变电场,电场强度在径向的梯度还会引起离子回旋运动导向中心的偏移,从而限制了共振离子从外加电磁场中的能量获取^[43]。

相比于使用理想电磁场的解析表达式,更贴近真实情况的计算方法是先基于 Maxwell 方程组计算共振加热区的电磁场强度分布,再根据得到的电磁

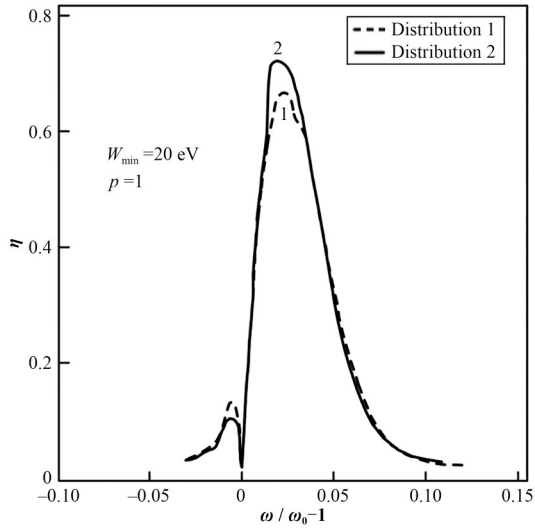


图5 在两种不同的离子纵向速度分布下加热效率 η 与加热场频率的关系,两者平均轴向速度 $U=6\times 10^3\text{ m}\cdot\text{s}^{-1}$,电场强度 $E=50\text{ V}\cdot\text{m}^{-1}$,轴向速度的等效温度 $T_z=10\text{ eV}$ ^[41]

Fig.5 Heating efficiency η vs. heating field frequency for two different ion distributions over longitudinal velocities, for the same mean longitudinal ion velocity $U=6\times 10^3\text{ m}\cdot\text{s}^{-1}$, and for electric field $E=50\text{ V}\cdot\text{m}^{-1}$ and effective temperature of longitudinal ion velocity $T_z=10\text{ eV}$ ^[41]

场数值求解离子的运动方程。需要说明的是,此处仅考虑外加电磁场对等离子体的作用,忽略了等离子体与外加电磁场的耦合效应。Compant 和 Pashkovsky^[44]将计算得到的电磁场强度分布与在实验装置ERIC或SIRENA上测量得到的结果进行了对比,二者吻合得较好,如图6(a)所示;计算得到的⁴⁴Ca离子通过加热区后的平均横向能量分布亦与实验测量值在变化趋势上一致,如图6(b)所示。另外,计算结果表明(图6(c)),当电子数密度 $n_e < 10^{12}\text{ cm}^{-3}$ 时,等离子体的存在对空间电场的改变不明显;当 $10^7\text{ cm}^{-3} \leq n_e \leq 10^{11}\text{ cm}^{-3}$ 时,射频电场强度最大值对应的轴向波数 $\bar{k}_z$ 及其展宽 $\Delta\bar{k}_z$ 最小,即共振加热的选择性最佳;另外,相较于二相天线,四相天线具有更单一的模式,因此更适合于同位素分离^[44]。

尽管普遍认为螺线管天线产生的射频电场受等离子体的屏蔽效应更加严重,但Volosov等^[45]认为该种天线能够为质量数高达150的同位素提供足够的加热电场。以Gd同位素分离为例,计算结果表明,在磁感应强度为3 T、共振长度为2 m、等离子体密度为 10^{12} cm^{-3} 、天线电流为60 A的条件下,¹⁵⁷Gd获得的能量能超出¹⁵⁶Gd和¹⁵⁸Gd的2~3倍^[45],如图7所示,此处函数 $F_s(v_{||})$ 表征了离子加热后的能量。在此基础上,Kotelnikov等^[46]提出利用二次谐波加热以减小等离子体屏蔽效应,通过计算均匀磁场中螺线管天线对Gd离子的加热效果,得出当等离子体密度为

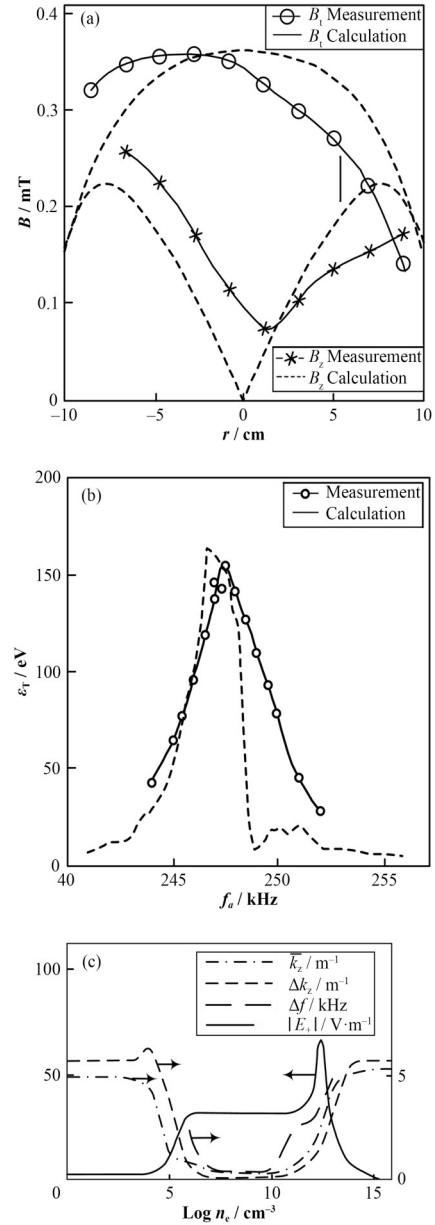


图6 SIRENA和ERIC装置相关的实验与计算结果^[44]
(a) 真空条件下SIRENA器件上轴向 $B_z(*)$ 和横向 $B_t(O)$ 射频磁场分量的径向分布;实验条件:频率 $f_a=384\text{ kHz}$,天线电流 $I=100\text{ A}$,天线半径 $r=10.5\text{ cm}$;参数计算值用虚线表示。(b) ERIC装置上⁴⁴Ca的平均横向能量与天线频率的关系;能量分析仪测量(-o-)和Runge-Kutta方法计算(---)结果。(c) ERIC装置中心处($r=0, z=0\text{ m}$)电场强度 $|E_z|$ 、最大电场强度对应的轴向波数 $\bar{k}_z$ 及其展宽 $\Delta\bar{k}_z$ 、共振频率偏移 Δf 随等离子体密度的变化

Fig.6 Experimental and computational results of SIRENA and ERIC devices^[44]. (a) Radial variations of the axial $B_z(*)$ and transversal $B_t(O)$ RF magnetic field components in vacuum on the SIRENA device; experimental conditions: frequency $f_a=384\text{ kHz}$, antenna current $I=100\text{ A}$, antenna radius $r=10.5\text{ cm}$; calculated values are represented by dashed lines. (b) Mean transverse energy of ⁴⁴Ca on the ERIC device versus the antenna frequency; energy analyzer measurements (-o-) and Runge-Kutta method calculations (---). (c) Variations of the electric field amplitude $|E_z|$, mean value $\bar{k}_z$ and its width $\Delta\bar{k}_z$ of the $E_z(k_z)$ spectrum and width Δf of the resonance with the plasma density at the plasma center ($r=0, z=0\text{ m}$) for the ERIC device

10^{12} cm^{-3} 、等离子体直径为 10 cm 时,二次谐波加热分离同位素的最优条件为:射频天线电流及匝数 $I_0 \times N = 60 \text{ A} \times 450$,共振长度 $l = 5 \text{ m}$,天线外加电压 $U = 70 \text{ kV}$,磁场强度 $H = 5 \text{ T}$ 。

除了用于质量数相差很小的同种元素的同位素分离外,理论计算结果表明,ICR 更易用于选择性分离质量数相差较大(100 左右)的不同元素,从而在核反应堆乏燃料(Spent Nuclear Fuel, SNF)处理方面具有潜在的应用价值^[47]。经过裂变反应后,乏燃料的主要成分包括裂变反应剩余的 ^{235}U 、生成的易裂变材料 ^{239}Pu 以及反应链产物(如 ^{90}Sr 、 ^{137}Cs 等)。由于部分裂片元素是中子毒物,累积到一定浓度后将影响反应堆的正常运行,因此,需要定期取出反应堆中的燃料元件进行处理。类似于同位素分离,ICR 乏燃料处理法可利用质量差将较轻的废料(Nuclear Ash, NA)同较重的易裂变元素(Nuclear Fuel, NF; 如 ^{239}Pu 等)分离。根据生态环保的要求,处理后易裂变元素在 NA 中的含量应当低于 0.1% ;而在反应堆中,为确保燃料品质,裂变产物在 NF 中的含量应当低于 10% ^[48]。相较于化学处理方法,ICR 方法不会产生额外的废弃物,主要消耗电能,而且能在单循环中获得纯度较高的处理产物,在等离子体流截面直径为 1 m 、密度为 10^{13} cm^{-3} ,且仅含有单电荷离子的条件下,理论估计得到的连续工作的单个分离器的铀产量可达到 $150 \text{ t} \cdot \text{a}^{-1}$ ^[49]。

不同于同位素二元分离时极小的单一质量差,乏燃料处理对象的质量差较大,且 NA 中含有的原子质量数在 $90 \sim 150$ 。为了加热一定质量范围内的 NA 离子,共振区的轴向磁场不再均匀,而是呈现出磁感应强度逐渐减小的趋势^[50],即:

$$B_0(z) = \left(1 - \beta \tanh \frac{z}{L_{B_0}}\right) B_0(0) \quad (18)$$

式中: β 为磁场不均匀度的表征参数; L_{B_0} 为磁场的特征长度,非均匀的磁场强度应该满足所有 NA 中单电荷离子的加热条件。由于质量数(A)在 240 左右的元素离子带双电荷时,其回旋频率也处于共振加热范围内,从而导致分离效果变差;尤其是 ^{238}U 原子的二级电离能约为 12 eV ,在电子温度不太低($T_e \geq 3 \text{ eV}$)的情况下,双电荷的 ^{238}U 离子密度较高,对分离效果带来的影响无法忽略^[51]。而当双电荷离子占比足够小($\xi < 0.1$)时,引入双射频电场分别加热质量数在 100 和 140 左右的 NA 离子,能够使荷质比在 120 附近的离子保持较低的能量状态,从而减小重质量的双电荷离子的干扰^[48,51]。另外,低密度的多电荷离子会约束等离子体密度及温度,由此限制分离产量;而这一点可以通过增大等离子体截面积,即

增大垂直于磁场的某一方向的尺度,来得到弥补^[48]。

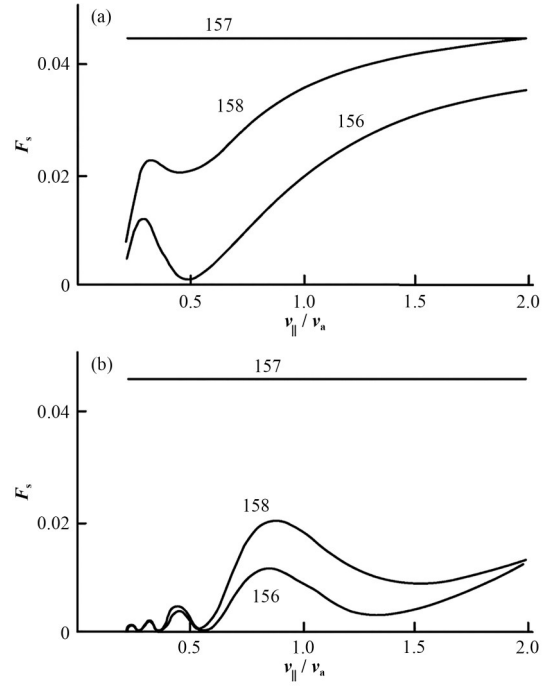


图7 不同磁场强度下的函数 $F_s(v_{\parallel})$ 曲线,部分参数条件为 $\omega = \Omega_a$, $u = v_a$, $l = 2 \text{ m}$, 图中数字代表同位素质量数^[45]

(a) $B = 1 \text{ T}$, (b) $B = 3 \text{ T}$
Fig.7 Curves of the function $F_s(v_{\parallel})$ with parameters $\omega = \Omega_a$, $u = v_a$, and $l = 2 \text{ m}$ under different magnetic induction intensity (where the digits denote the mass numbers of isotopes)^[45]
(a) $B = 1 \text{ T}$, (b) $B = 3 \text{ T}$

另外,通过弯曲磁场可以进一步提高 NA 离子的分离。由于带电粒子在弯曲磁场中具有漂移速度^[52]:

$$V_{\text{dr}} = \frac{v_{\parallel}^2 + v_{\perp}^2 / 2}{R_c \omega_i} \quad (19)$$

式中: $v_{\parallel}$ 和 $v_{\perp}$ 分别为离子在平行和垂直于磁场方向的速度分量; R_c 为磁力线弯曲半径; ω_i 为离子回旋频率。具有不同能量的离子在弯曲磁场中的漂移距离不同,因此,加热后的 NA 离子可以通过弯曲磁场进一步与冷等离子体流分离^[52]。

2.2 实验研究进展

除了理论研究外,世界各国的研究人员也开展了大量的有关 ICR-IS 的实验研究工作。1976 年, Dawson 等^[53]在美国 TRW 公司(Thompson-Ramo-Wooldridge Inc.)对 K、Ne、Cl 等同位素进行了选择性离子回旋共振加速实验,首次利用 ICR 实现了同位素分离。实验结果表明,在密度为 $10^9 \sim 10^{11} \text{ cm}^{-3}$ 的等离子体中,能较好地观测到被加速元素的同位素分离效应;通过对钨带上采集到的 K 样品进行质谱分析,发现 ^{41}K 与 ^{39}K 的丰度比达到了 4,远高于天然的

0.07,这进一步证明了ICR用于同位素分离的可行性。20世纪80年代初,美国希望能够寻找到一种新的铀同位素分离方法,用于替代气体扩散法。为此,美国TRW公司建造了PPM(Production Prototype Module)设施,以研究离子回旋共振法实现工业规模同位素分离的可行性。在美国,离子回旋共振法被称为“等离子体分离过程(Plasma Separation Process, PSP)”。然而,由于当时的美国能源部更为看好原子蒸气激光同位素分离法(Atomic Vapor Laser Isotope Separation, AVLIS),PSP法未被认可为一种新的铀同位素的分离方法,但该方法在获得稳定同位素方面表现出很大的潜能,如TRW公司开展的富集 ^{62}Ni 的实验,含40%的 ^{62}Ni 的产率曾达到了 $13\text{ g}\cdot\text{d}^{-1}$ [21]。20世纪80年代末,PPM设施转移到橡树岭国家实验室(Oak Ridge National Laboratory),用于生产稳定同位素(如可用于癌症治疗的 ^{102}Pd 等[54])。此外,原本计划利用PPM对电磁分离装置中使用的原料进行初步富集[55],但此后该计划并未得到实施,PPM设施也被封存。直到21世纪初,考虑到较高产量、中等至高度浓缩等优势,PPM装置被租借给TGX公司(Theragenics Corporation),并在2001年末完成了第一次等离子体性能测试实验,2002年采用Mo为原料进行了满功率运转,实现了对整个装置的调试和校准,该装置采用磁感应强度为2 T的超导磁体,所产生的等离子体密度约为 10^{12} cm^{-3} 、直径为40 cm[54]。TGX公司利用PPM装置生产了 ^{60}Ni 、 ^{102}Pd 、 ^{157}Gd 、 ^{164}Dy 、 ^{167}Er 等多种同位素,用于医药及核科学等领域[56],但由于 ^{157}Gd 、 ^{164}Dy 、 ^{167}Er 元素质量较大,对装置参数的要求更高,对这三种元素的实验结果不如TRW公司的 ^{62}Ni 富集实验成功[21]。

20世纪80年代末,法国在Saclay研究中心(Saclay Research Center)建造了ICR-IS装置(d'Experience de Resonance Ionique Cyclotron, ERIC),以研究金属(包括Mg、Ca、Ba等元素)同位素的分离过程。该装置的超导磁体采用500 A的电流产生磁感应强度 $B\leq 3\text{ T}$ 的磁场,对应的磁场储能为 1.4 MJ [57]。ERIC装置的典型参数和实验结果分别如表2、3所示[58]。虽然ERIC装置具有较好的分离系数,但实验中的离子流流量仍不足以证明ICR方法的经济性,欲提高ERIC装置的产量需要产生更均匀、强度更大的磁场,但这也意味着更高的运行成本。90年代末,Compant等[59]在ERIC装置上开展了纯金属元素的分离实验,结果表明,离子加热效果(以离子能量的增加值表征)与电流的平方线性相关,与理论推导一致;且离子加热效果亦与磁感应强

度的平方线性相关。

20世纪80年代末,俄罗斯库尔恰托夫原子能研究院(Kurchatov Institute of Atomic Energy, KIAE)建造了用于分离锂元素的ICR实验装置,其非官方名称SIRENA来自于锂等离子体的颜色[21]。该实验装置采用直流放电电离锂蒸气作为等离子体源,当放电电流为75 A时,轴线处的等离子体密度在 10^{12} cm^{-3} 左右;水冷磁场线圈能够产生最大为0.3 T的均匀磁场,在0.8 m的长度内不均匀度小于1%;螺旋天线轴向长度为65 cm,直径为20 cm,产生的径向电场强度约为 $50\text{ V}\cdot\text{m}^{-1}$;收集板有圆柱形和平板型两种。Babichev等[60]实验表明,沉积在平板型收集板上的锂非均匀分布,但在收集板上施加阻滞电势(+20 V)后这种非均匀分布基本消失;上述实验现象并非是由射频电场引起的,而是与等离子体在源区受径向电流影响获得一定的角动量有关。虽然该实验成功富集到了纯度为80%~90%的 ^6Li ,但就整体分离效率而言,等离子体流中的 ^6Li 同位素萃取系数小于0.1,且弱磁场限制了萃取系数的进一步提高[61]。

表2 ERIC装置典型等离子体参数^[58]
Table 2 Some typical plasma parameters of the ERIC^[58]

参数 Parameters	数值 Values
最大磁感应强度 Magnetic field (max)	3 T
均匀性 Homogeneity	1%
均匀区长度 Length of homogeneity	2 m
等离子体直径 Diameter of the plasma	11 cm
电子温度 Electron temperature	2~5 eV
离子温度 Ion temperature	0.2~2 eV
离子密度 Ion density	$(1\sim 5)\times 10^{11}\text{ cm}^{-3}$
微波功率 Microwave power	1 kW
微波频率 Microwave frequency	29 GHz

除了美国、法国和俄罗斯外,其他国家有关ICR-IS的研究大多停留在实验室阶段,并未在ICR-IS方面取得实质性突破。例如,20世纪90年代,日本的Nanri等[62]以小电流片状氩等离子体作为等离子体源,采用平板电极外加射频电场加热离子,在射频电场强度为 $20\text{ V}\cdot\text{cm}^{-1}$ 、磁感应强度为1.7~2.6 kG的情况下,实验得到的氩离子共振频率是理论值的2.8倍;在将等离子体密度降低了三个数量级后,得到的氩、氖和氮的共振频谱图与理论吻合良好,他们据此推测,离子共振频率实验值与理论值相差较大是高密度等离子体中较强的空间电荷形成的势阱所造成的[63];而Katakura等[64]则提出在ICR方法的基础上,通过增加径向磁场使得离子在轴向进一步分离,尽管在实验中也观察到了离子回旋中心的偏移,

但该方法的实用性仍有待于进一步验证。而到目前为止,中国在ICR同位素分离领域尚无相关研究结果的公开报道。随着同位素应用领域的不断拓展,

十分有必要开展有关ICR-IS这一新型同位素分离方法和技术的深入研究。

表3 法国ERIC装置分离实验部分结果^[58]
Table 3 Part of separation experimental results on ERIC^[58]

共振同位素 Resonant isotope	天然丰度 Natural abundance / %	相对质量差 Relative mass difference / %	磁场 Magnetic field / T	浓缩系数 Enrichment factor	贫化系数 Depletion factor
⁴³ Ca	0.134	6.86	0.714	11.8	0.246
⁴⁴ Ca	2.06	9.05	1.29	18	0.174
⁴⁸ Ca	0.186	16.5	1.29	10	0.108
⁴⁸ Ca	0.186	16.5	2.07	24	—
⁴⁸ Ca	0.186	16.5	0.723	24	0.335
⁶⁴ Zn	49.8	4.44	0.716	1.04	0.263
⁶⁸ Zn	18	4.95	1.25	4.42	0.63
¹¹⁰ Cd	12.4	2.74	1.29	2.65	0.62
¹³² Ba	0.104	4.11	1.29	8.5	0.76
¹⁷⁶ Yb	12.8	1.89	2.94	6	0.92
⁵⁰ Cr	4.35	4.3	1.54	13.6	—
⁶² Ni	3.35	5.49	0.95	3.28	0.96
¹⁰² Pd	1.03	4.47	0.714	2.04	0.94

3 总结与展望

本文从离子回旋共振同位素分离方法的基本原理和装置构成入手,针对离子回旋共振装置的等离子体区、共振加热区、收集区三个主要区域,分析了等离子体的产生、目标同位素离子的选择性加热,以及目标同位素离子收集三个主要过程,综述了国际上目前公开报道的理论和实验研究进展,以期为后续该领域的基础和应用研究提供一定的参考。通过对已有文献的调研分析,主要得到如下结论:

1)从目前已有的研究结果看来,利用离子回旋共振实现不同质量元素的离子分离是可行的,但也面临着能耗高、分离条件苛刻等困难。一方面,待分离元素的离子化和共振加热需要消耗大量能量,具有高均匀度的强磁场和频率稳定的回旋电场的产生依赖于超导线圈和射频天线,而收集区富集板材料的性质和结构设计则对收集系数有显著影响;另一方面,等离子体的产生、目标同位素离子的选择性加热和收集等过程相互耦合,从而使得整个系统的参数优化变得更加复杂和困难。

2)在理论分析和数值模拟研究方面,基于单粒子模型的计算虽然在一定程度上揭示了离子回旋共振同位素分离的主要物理机制,但与实际物理过程相比仍存在一定的差距。特别是当等离子体密度较高时,单粒子模型的假设不再成立。由于等离子体产生的空间电荷效应和粒子之间碰撞作用的影响不

可忽略,进而对共振离子的加热过程产生影响,需要发展考虑等离子体与外加电磁场间相互作用过程的新的物理数学模型。特别是以提高分离效率为目标,在分离机制研究的基础上,提出针对ICR-IS系统实际应用的参数优化理论和方法,对于推动ICR-IS技术的工业化应用将具有重要意义。

3)在实验研究和装置研发方面,受制于同位素种类、分离效率和大型螺旋超导线圈的建造费用和能耗等诸多因素,该方法依然处于实验室阶段。美国PPM装置、法国ERIC装置及俄罗斯SIRENA装置均在实验方面取得了一定的进展,日本等国家也已开展了相关的探索性实验研究,而我国在该领域的相关研究还十分薄弱。建立ICR-IS原理验证实验装置,与理论分析和数值模拟研究相结合,开展ICR-IS分离过程参数诊断、分离机制与特性,以及整个系统结构参数和工作参数优化等的应用基础研究,对于推动ICR-IS技术的工业化应用同样具有重要意义。

随着高压高频大功率电源性能的提升、超导磁场技术的突破,以及非平衡态等离子体源关键参数调控理论和技术的发展,离子回旋共振同位素分离方法有望在降低能耗、产生高强度高均匀度磁场、提高等离子体加热效率和离子收集性能等方面解决目前研究面临的关键科学与技术问题,取得突破性进展。另一方面,随着医用稳定同位素以及乏燃料后处理等场景的应用需求日益增加,离子回旋共振法

必将展现出更加广阔的应用前景。因此,继续系统深入地开展以等离子体产生和带电粒子非平衡协同输运为核心的理论分析、数值模拟和实验研究,对于推动离子回旋共振同位素分离技术的工业化应用具有十分重要的意义。

作者贡献声明 罗岚月负责搜集资料和撰写论文初稿;张梦龙负责论文的后续修改和图、表的绘制;汪耀庭负责整理文献和规划论文结构;李和平负责提出写作思路,对论文进行审核和修改;姜东君、周明胜对论文工作进行了指导和审核。

参考文献

- Hipple J A, Sommer H, Thomas H A. A precise method of determining the faraday by magnetic resonance[J]. *Physical Review*, 1949, **76**(12): 1877 - 1878. DOI: 10.1103/physrev.76.1877.2.
- Wobschall D, Graham J R, Malone D P. Ion cyclotron resonance and the determination of collision cross sections [J]. *Physical Review*, 1963, **131**(4): 1565 - 1571. DOI: 10.1103/physrev.131.1565.
- Anders L R, Beauchamp J L, Dunbar R C, *et al.* Ion-cyclotron double resonance[J]. *The Journal of Chemical Physics*, 1966, **45**(3): 1062 - 1063. DOI: 10.1063/1.1727658.
- Comisarow M B, Marshall A G. Fourier transform ion cyclotron resonance spectroscopy[J]. *Chemical Physics Letters*, 1974, **25**(2): 282 - 283. DOI: 10.1016/0009-2614(74)89137-2.
- Bray F, Fabrizi I, Flament S, *et al.* Robust high-throughput proteomics identification and deamidation quantitation of extinct species up to Pleistocene with ultrahigh-resolution MALDI-FTICR mass spectrometry [J]. *Analytical Chemistry*, 2023, **95**(19): 7422 - 7432. DOI: 10.1021/acs.analchem.2c03301.
- Kip A M, Valverde J M, Altelaar M, *et al.* Combined quantitative (phospho)proteomics and mass spectrometry imaging reveal temporal and spatial protein changes in human intestinal ischemia-reperfusion[J]. *Journal of Proteome Research*, 2022, **21**(1): 49 - 66. DOI: 10.1021/acs.jproteome.1c00447.
- Kansha Y, Kato S, Tsuji K. Analysis of reactions during the residue desulfurization of heavy oil based on a data-driven method[J]. *Computers & Chemical Engineering*, 2022, **164**: 107901. DOI: 10.1016/j.compchemeng.2022.107901.
- Vanini G, Barra T A, Souza L M, *et al.* Characterization of nonvolatile polar compounds from Brazilian oils by electrospray ionization with FT-ICR MS and Orbitrap-MS [J]. *Fuel*, 2020, **282**: 118790. DOI: 10.1016/j.fuel.2020.118790.
- Marshall A G, Hendrickson C L, Jackson G S. Fourier transform ion cyclotron resonance mass spectrometry: a primer[J]. *Mass Spectrometry Reviews*, 1998, **17**(1): 1 - 35. DOI: 10.1002/(SICI)1098-2787(1998)17: 1<1: AID-MAS1>3.0.CO;2-K.
- Perkins F W. Heating tokamaks via the ion-cyclotron and ion-ion hybrid resonances[J]. *Nuclear Fusion*, 1977, **17** (6): 1197 - 1224. DOI: 10.1088/0029-5515/17/6/008.
- Lerche E, Van Eester D, Ongena J, *et al.* Optimizing ion-cyclotron resonance frequency heating for ITER: dedicated JET experiments[J]. *Plasma Physics and Controlled Fusion*, 2011, **53**(12): 124019. DOI: 10.1088/0741-3335/53/12/124019.
- Colas L, Vulliez K, Basiuk V, *et al.* Ion cyclotron resonant heating in tore supra[J]. *Fusion Science and Technology*, 2009, **56**(3): 1173 - 1204. DOI: 10.13182/fst09-a9173.
- Zhao Y P, Zhang X J, Mao Y Z, *et al.* EAST ion cyclotron resonance heating system for long pulse operation[J]. *Fusion Engineering and Design*, 2014, **89**(11): 2642 - 2646. DOI: 10.1016/j.fusengdes.2014.06.017.
- 王书松, 黄娟, 常加峰, 等. ICRF 加热下 EAST 快离子损失速度空间分布初步研究[J]. *核技术*, 2023, **46**(12): 120601. DOI: 10.11889/j.0253-3219.2023.hjs.46.120601. WANG Shusong, HUANG Juan, CHANG Jiafeng, *et al.* Preliminary study of velocity-space distribution of fast-ion loss under ion cyclotron resonance heating in the EAST[J]. *Nuclear Techniques*, 2023, **46**(12): 120601. DOI: 10.11889/j.0253-3219.2023.hjs.46.120601.
- 杨冠铭, 郝广周, 卢凌峰, 等. HL-3 装置上离子回旋波加热对中子产额的影响[J]. *核技术*, 2024, **47**(5): 050001. DOI: 10.11889/j.0253-3219.2024.hjs.47.050001. YANG Guanming, HAO Guangzhou, LU Lingfeng, *et al.* Influence of ion cyclotron range of frequencies heating on neutron emission rate in HL-3 tokamak[J]. *Nuclear Techniques*, 2024, **47**(5): 050001. DOI: 10.11889/j.0253-3219.2024.hjs.47.050001.
- 温晓东, 徐立清, 胡立群, 等. 离子回旋频率波加热下的 EAST 等离子体锯齿行为研究[J]. *核技术*, 2023, **46**(1): 010502. DOI: 10.11889/j.0253-3219.2023.hjs.46.010502. WEN Xiaodong, XU Liqing, HU Liqun, *et al.* Sawtooth behavior of EAST plasma under ICRF heating[J]. *Nuclear Techniques*, 2023, **46**(1): 010502. DOI: 10.11889/j.0253-

- 3219.2023.hjs.46.010502.
- 17 Díaz F R C. An overview of the VASIMR engine: high power space propulsion with RF plasma generation and heating[C]. AIP Conference Proceedings. Oxnard, California (USA). AIP, 2001, **595**(1): 3–15. DOI: 10.1063/1.1424142.
- 18 Cassady L D, Longmier B W, Olsen C S, *et al.* VASIMR performance results[C]. Proceedings of the 46th AIAA/ASME/SAE/ASEE Joint Propulsion Conference & Exhibit. Nashville, TN. Reston, Virginia: AIAA, 2010: AIAA2010-6772. DOI: 10.2514/6.2010-6772.
- 19 Hollweg J V, Isenberg P A. Generation of the fast solar wind: a review with emphasis on the resonant cyclotron interaction[J]. Journal of Geophysical Research: Space Physics, 2002, **107**(A7): SSH 12-1–SSH 12-37. DOI: 10.1029/2001ja000270.
- 20 肖啸菴. 同位素分离[M]. 北京: 原子能出版社, 1999.
- XIAO Xiaolan. Isotope separation[M]. Beijing: Atomic Press, 1999.
- 21 Dolgolenko D A, Muromkin Y A. Plasma isotope separation based on ion cyclotron resonance[J]. Physics-Uspekhi, 2009, **52**(4): 345 – 357. DOI: 10.3367/ufne.0179.200904c.0369.
- 22 Gorshunov N M, Dolgolenko D A, Muromkin Y A, *et al.* ECR sources of calcium plasma[J]. Instruments and Experimental Techniques, 2011, **54**(1): 97 – 103. DOI: 10.1134/S0020441211010155.
- 23 Compant La Fontaine A, Louvet P. Study of an ECR sputtering plasma source[J]. Plasma Sources Science and Technology, 1999, **8**(1): 125 – 135. DOI: 10.1088/0963-0252/8/1/015.
- 24 Churkin I N, Volosov V I, Steshov A G. Universal metal ion source[J]. Review of Scientific Instruments, 1998, **69**(2): 822 – 824. DOI: 10.1063/1.1148577.
- 25 Churkin I N, Semenov E P, Steshov A G, *et al.* Electrode system for plasma source with crossed fields[J]. Fusion Science and Technology, 2005, **47**(1T): 348 – 350. DOI: 10.13182/fst05-a686.
- 26 Beiranvand R. Magnetic field uniformity of the practical tri-axial Helmholtz coils systems[J]. The Review of Scientific Instruments, 2014, **85**(5): 055115. DOI: 10.1063/1.4876480.
- 27 Safari R, Sohbatzadeh F. Effect of DC magnetic field on atmospheric pressure argon plasma jet[J]. Indian Journal of Physics, 2015, **89**(5): 495 – 502. DOI: 10.1007/s12648-014-0609-0.
- 28 Xiao C J, Chen Y H, Yang X Y, *et al.* Plasma rotation in the Peking University Plasma Test device[J]. The Review of Scientific Instruments, 2016, **87**(11): 11D610. DOI: 10.1063/1.4961282.
- 29 Magarotto M, Melazzi D, Pavarin D. Study on the influence of the magnetic field geometry on the power deposition in a Helicon plasma source[J]. Journal of Plasma Physics, 2019, **85**(4): 905850404. DOI: 10.1017/s0022377819000473.
- 30 Dubinov A E, Kornilova I Y, Selemir V D. Isotope separation in plasmas by the ion-cyclotron resonance method[J]. Physics of Particles and Nuclei, 2001, **32**(4): 443 – 452.
- 31 Volosov V I, Kotelnikov I A, Churkin I N, *et al.* Setup for isotope separation by the ICR-heating method[J]. Atomic Energy, 2000, **88**(5): 385 – 392. DOI: 10.1007/BF02680534.
- 32 肖啸菴, 孙系仁, 李公攀, 等. 分离铀同位素的离子回旋共振法[J]. 国外核新闻, 1985(1): 16–18. DOI: CNKI: SUN:GWHW.0.1985-01-016.
- XIAO Xiaolan, SUN Shiren, LI Gongpan, *et al.* Ion cyclotron resonance method for separation of uranium isotopes[J]. Foreign Nuclear News, 1985(1): 16–18. DOI: CNKI: SUN:GWHW.0.1985-01-016.
- 33 Li H P, Ostrikov K K, Sun W T. The energy tree: Non-equilibrium energy transfer in collision-dominated plasmas[J]. Physics Reports, 2018, **770 – 772**: 1 – 45. DOI: 10.1016/j.physrep.2018.08.002.
- 34 束玉珍, 吴继宗, 邓惟勤. 冠状化合物在锂同位素分离中的应用[J]. 核化学与放射化学, 2015, **37**(1): 12 – 17. DOI: 10.7538/hhx.2015.37.01.0012.
- SHU Yuzhen, WU Jizong, DENG Weiqin. Application of crown compounds in lithium isotopes separation[J]. Journal of Nuclear and Radiochemistry, 2015, **37**(1): 12 – 17. DOI: 10.7538/hhx.2015.37.01.0012.
- 35 李虎林, 李良君, 李思宁, 等. 低温精馏分离稳定同位素碳-13 回顾与展望[J]. 低温与特气, 2008, **26**(6): 9 – 15. DOI: 10.3969/j.issn.1007-7804.2008.06.003.
- LI Hulin, LI Liangjun, LI Sining, *et al.* Review and prospect for separation of stable isotope carbon-13 by cryogenic rectification[J]. Low Temperature and Specialty Gases, 2008, **26**(6): 9 – 15. DOI: 10.3969/j. issn. 1007-7804.2008.06.003.
- 36 孙启明, 周明胜, 潘建雄, 等. 以四氟化锆为介质离心分离 ^{72}Ge 同位素技术研究[J]. 同位素, 2021, **34**(5): 475 – 479. DOI: 10.7538/tws.2021.34.05.0475.

- SUN Qiming, ZHOU Mingsheng, PAN Jianxiong, *et al.* Technical study on centrifugal separation of ^{72}Ge isotope with germanium tetrafluoride as processing gas[J]. Journal of Isotopes, 2021, **34**(5): 475 – 479. DOI: 10.7538/tws.2021.34.05.0475.
- 37 Karchevskii A I, Potanin E P. Coefficient of the extraction of the target isotope and optimum parameters of a collector of heated ions in the context of the ICR method of isotope separation[J]. Plasma Physics Reports, 2002, **28**(7): 565 – 571. DOI: 10.1134/1.1494054.
 - 38 Potanin E P. Analysis of the separation of gadolinium isotopes by the ICR method[J]. Plasma Physics Reports, 2008, **34**(2): 121 – 127. DOI: 10.1134/S1063780X08020049.
 - 39 Karchevskii A I, Potanin E P. Calculation of the ion transverse velocity distribution function under ion cyclotron resonance heating[J]. Technical Physics, 2004, **49**(6): 800 – 803. DOI: 10.1134/1.1767897.
 - 40 Karchevskii A I, Potanin E P. Calculation of the ion distribution function over transverse velocities under ICR heating conditions and separation parameters of a collector of heated ions[J]. Plasma Physics Reports, 2004, **30**(12): 1006 – 1011. DOI: 10.1134/1.1839954.
 - 41 Potanin E P. Effect of the ion distribution over longitudinal velocities on the efficiency and separating parameters of the ICR method of isotope separation[J]. Technical Physics, 2005, **50**(6): 698 – 704. DOI: 10.1134/1.1947343.
 - 42 Potanin E P. Heating of gadolinium plasma ions by the ion cyclotron resonance method[J]. Technical Physics, 2006, **51**(12): 1586 – 1590. DOI: 10.1134/S106378420612005X.
 - 43 Volosov V I, Demenev V V, Steshov A G, *et al.* Some features of ICR heating by a solenoidal antenna[J]. Plasma Physics Reports, 2002, **28**(7): 559 – 564. DOI: 10.1134/1.1494053.
 - 44 Compant L F A, Pashkovsky V G. Study of selective heating at ion cyclotron resonance for the plasma separation process[J]. Physics of Plasmas, 1995, **2**(12): 4641 – 4649. DOI: 10.1063/1.870955.
 - 45 Volosov V I, Kotelnikov I A, Kuzmin S G. Separation of heavy-element isotopes by selective ICR heating techniques[J]. Plasma Physics Reports, 1998, **24**(6): 474 – 485.
 - 46 Kotelnikov I A, Kuzmin S G. Separation of heavy-element isotopes by ICR heating at the second harmonic [J]. Plasma Physics Reports, 1999, **25**(12): 1010 – 1019.
 - 47 Timofeev A V. ICR heating in ion separation systems[J]. Plasma Physics Reports, 2005, **31**(12): 1012 – 1028. DOI: 10.1134/1.2147647.
 - 48 Timofeev A V. Plasma processing of spent nuclear fuel by two-frequency ion cyclotron resonance heating[J]. Plasma Physics Reports, 2009, **35**(11): 912 – 923. DOI: 10.1134/S1063780X09110026.
 - 49 Zhil'tsov V A, Kulygin V M, Semashko N N, *et al.* Plasma separation of the elements applied to nuclear materials handling[J]. Atomic Energy, 2006, **101**(4): 755 – 759. DOI: 10.1007/s10512-006-0164-7.
 - 50 Timofeev A V. On the theory of plasma processing of spent nuclear fuel[J]. Physics-Uspekhi, 2014, **57**(10): 990 – 1021. DOI: 10.3367/ufne.0184.201410g.1101.
 - 51 Timofeev A V. Plasma method for processing spent nuclear fuel[J]. Plasma Physics Reports, 2007, **33**(11): 890 – 905. DOI: 10.1134/S1063780X07110025.
 - 52 Timofeev A V. Ion separation by a curved magnetic field in a multicomponent plasma[J]. Plasma Physics Reports, 2000, **26**(7): 626 – 627. DOI: 10.1134/1.952900.
 - 53 Dawson J M, Kim H C, Arnush D, *et al.* Isotope separation in plasmas by use of ion cyclotron resonance [J]. Physical Review Letters, 1976, **37**(23): 1547 – 1550. DOI: 10.1103/physrevlett.37.1547.
 - 54 Stevenson N R, Bigelow T S, Tarallo F J. Industrial scale production of stable isotopes employing the technique of plasma separation[J]. Journal of Radioanalytical and Nuclear Chemistry, 2003, **257**(1): 153 – 155. DOI: 10.1023/A:1024722132332.
 - 55 Tracy J G. Isotope separation program—present and future[J]. Nuclear Instruments and Methods in Physics Research Section A: Accelerators, Spectrometers, Detectors and Associated Equipment, 1989, **282**(1): 261 – 266. DOI: 10.1016/0168-9002(89)90149-6.
 - 56 Bigelow T S, Tarallo F J, Stevenson N R. Production of stable isotopes utilizing the plasma separation process[J]. Nuclear Instruments and Methods in Physics Research Section B: Beam Interactions with Materials and Atoms, 2005, **241**(1 – 4): 652 – 654. DOI: 10.1016/j.nimb.2005.07.163.
 - 57 Compant L F A, Gil C, Louvet P. Isotope separation by ionic cyclotron resonance[R]. CEA Centre d'Etudes Nucleaires de Saclay, 1986.
 - 58 Louvet P, Compant L F A, Larousse B, *et al.* Heavy stable isotope separation by ion cyclotron resonance[C]. 4th

- Workshop on Separation Phenomena in Liquids and Gases, Beijing, 1994: 83–92.
- 59 Compant L F A, Louvet P, Le Gourrierc P, *et al.* Selective heating of high-pressure vapour elements by ion-cyclotron resonance[J]. Journal of Physics D: Applied Physics, 1998, **31**(7): 847 – 865. DOI: 10.1088/0022-3727/31/7/014.
- 60 Babichev A P, Gorshunov N M, Dolgolenko D A, *et al.* Distribution of the lithium deposition on the collector during separation of lithium isotopes by the plasma ICR method[J]. Plasma Physics Reports, 2014, **40**(9): 760 – 766. DOI: 10.1134/S1063780X14090013.
- 61 Dolgolenko D A, Muromkin Y A, Pashkovsky V G. An experimental technique for separating lithium isotopes in plasma using the ion cyclotron resonance method[J]. Instruments and Experimental Techniques, 2019, **62**(6): 798 – 808. DOI: 10.1134/S0020441219060058.
- 62 Nanri K, Arai K, Matsubara A, *et al.* Isotope separation in a magnetized sheet plasma by ion cyclotron resonance[J]. Nuclear Instruments and Methods in Physics Research Section B: Beam Interactions with Materials and Atoms, 1992, **70**(1 – 4): 37 – 39. DOI: 10.1016/0168-583x(92)95906-8.
- 63 Nanri K, Matsumura M, Homma M, *et al.* Ion cyclotron resonance in a magnetized sheet plasma[J]. Review of Scientific Instruments, 1994, **65**(4): 1359 – 1361. DOI: 10.1063/1.1144960.
- 64 Katakura H, Miura K, Inoue M. A new concept of isotope separation using ion cyclotron resonance in a magnetic field having a radial component[J]. Japanese Journal of Applied Physics, 1993, **32**(5R): 2167. DOI: 10.1143/jjap.32.2167.