

原子激光同位素分离的离子引出技术

王雅睿, 包成玉

(清华大学工程物理系, 北京 100084)

摘要: 介绍了离子引出的几种方法, 包括平行板电极法、交替偏压平行板电极法、线状阳极对称电极法、 Π 状电极法、 M 状电极法、射频共振法等, 并对这些技术进行了简要的评述。重点介绍了射频共振引出的理论模型和模拟实验方法。选择合适的离子引出参数, 射频共振法比平行板电极法的离子引出效果更好。

关键词: 质谱学; 离子引出技术; 评论; 原子蒸汽激光; 平行板电极; 射频场

中图分类号: O532; O562; T L25 **文献标识码:** A **文章编号:** 1004-2997(2003) 02-370-07

分离同位素的方法有, 喷嘴法、化学法、离心法、扩散法、激光法、等离子体方法等等。在这些方法中, 离心法耗能少、原理简单, 使用最广泛的则是气体扩散法。世界上大约三分之二的浓缩铀是用气体扩散法生产的, 另三分之一则是用离心法生产的。气体扩散法由于单级分离系数很低, 必须大规模级联才能提高浓缩铀的丰度, 所以能耗巨大, 成本高^[1]。离心法与扩散法相比, 单级分离系数大为提高, 能耗有所改善。随着激光技术的快速发展和广泛应用, 利用激光能谱的单性和高效性, 出现了一种新的浓缩方法, 即激光同位素分离 (Laser isotope separation (LIS))^[1,2]。

激光同位素分离法主要分为两种: 分子激光同位素分离法 (Molecular laser isotope separation, MLIS) 和原子蒸汽激光同位素分离法 (Atomic vapor laser isotope separation, AVLIS), 我们主要考虑对 AVLIS 的研究。AVLIS 的过程是^[2]: 首先由电子枪射出的电子撞击坩埚中的金属, 使金属获得能量蒸发为气态, 然后用一定频率的激光照射金属蒸汽, 根据不同同位素原子能级间的细微差别, 利用激光单色性好的特点, 将激光频率调到使目标同位素原

子电离的能级上, 用单光谱激光照射金属蒸汽, 使目标同位素原子分解为电子和离子。这时目标同位素离子带有电性, 可以利用电、磁场收集。AVLIS 可分为三部分: 1) 光电离铀原子的激光器系统; 2) 金属铀蒸发循环系统; 3) 铀离子引出收集系统。

由于激光具有很高的光谱选择性, AVLIS 方法只需一次就可进行充分分离, 所以分离效率高, 单个分离装置就具备一定的生产能力, 费用少。经过十几年的研究, AVLIS 技术已经从最初的实验室研究发展到工业示范生产规模^[1]。

1 离子引出现状

为了提高原子蒸汽激光同位素分离中离子蒸汽的引出收集效率, 各国科学家提出了很多方法并进行了理论和实验研究。各种引出方法中最简单和最早的要算平行板电场法^[3], 原子蒸汽在平行板电极中间被多步选择性激发至光电离后, 离子被加在电极上的高压所产生的电场引出并收集。在这种方法的基础上, 有多种改进和发展, 比如交替偏压的平行板电极法^[4], 线状阳极对称电极法^[5], Π 状电极法^[6], M 状电极法^[7]和改进

收稿日期: 2002-10-21

作者简介: 王雅睿 (1978-), 男 (汉族), 河南洛阳人, 硕士研究生, 工程物理专业

E-mail: wy00@mails.tsinghua.edu.cn

* 通信作者: 包成玉, 教授, 电话: 010-62784599, E-mail: baocyc@mails.tsinghua.edu.cn

©1994-2015 China Academic Journal Electronic Publishing House. All rights reserved. <http://www.cnki.net>

M 型电极法^[8], 射频 (Radio frequency, RF) 共振法^[9]等等。

1.1 平行板电极法^[3]

离子引出收集最基础的方法是平行板电极法。原子蒸气在平行板电极中间被光电离后, 离子被加在电极上的高压所产生的电场引出收集。图 1 是平行板电极法的示意图

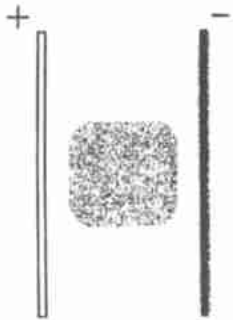


图 1 平行板电极法离子引出示意图
Fig. 1 Ion extraction by parallel plate electric pole

在 AVLIS 离子引出的平行板电极法中, 为了缩短引出时间, 提高收集效率, 可以采用如下措施: 减小初始离子密度缩短引出时间, 提高外加电压缩短引出时间, 增加电子温度缩短引出时间。但是离子密度小对提高工作效率不利。为了提高效率, 用提高电子温度的效果是有限的; 外加电压过高会引起极板击穿, 还会增加极板的溅射效应, 使收集率降低, 对离子引出是不利的。这些都是平行板电极法固有的难以解决的问题, 所以该方法收集效果的改进是有限的。

F. F. Chen^[3]在 1980 年对稳恒电场下一维的离子引出过程做了模拟研究

图 2 是平行板电极法离子引出的离子密度和电位分布^[7], 是按一维模型处理得出鞘层的主

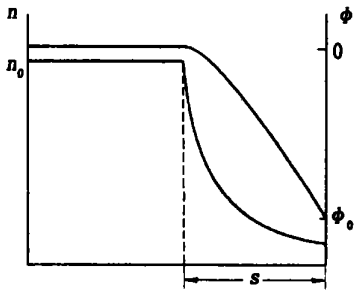


图 2 平行板电极法引出的离子密度和电位分布^[7]
Fig. 2 Ion density and potential distribution extracted by parallel plate electric pole

要特征^[10]。考虑一维平行板电极法的情况, 在等离子体右边的极板上加上负高压 U_b , 则靠近右极板的电子被外部高压所排斥, 远离右极板, 而离子被右极板的负高压所吸引, 向右加速, 最后打在右极板被极板收集。这样在右极板附近就形成了一个只有离子没有电子的区域, 由外部负高压所形成的电场只存在这个区域内, 区域以外的等离子体则被屏蔽, 感受不到外部负高压电场的存在, 这个区域就是鞘层。鞘层中的离子被右极板引出收集后, 等离子体边界的离子在电场作用下不断补充到鞘层中。随着离子的不断引出, 等离子体的密度开始降低, 因此鞘层厚度增加, 鞘层边界开始往等离子体内移动。这个过程一直持续到鞘层的厚度达到左、右极板的间距, 极板间所有离子都在外电场的作用下被引出收集。

1.2 交替偏压的平行板电极法^[4]

如图 3 所示, 在平行板电极法的基础上, 交替改变两个极板之间的电场极性, 离子就交替从两边引出, 被距离近的极板收集, 这样可以缩短离子到极板的运动路程, 从而减少离子收集所用的时间。忽略等离子体向正极板的扩散, 离子在每边的行为相当于在距离为一半等离子体宽度的平行极板中, 只是每边的离子流是间歇的。

1.3 线状阳极对称电极法

Ogura^[5]采用线状电极来加快离子的引出时间。他们在负偏压的两平行电极板的正中放置一个正偏压的线状电极, 因为离子的引出由空间电荷流决定, 其大小与正负极板距离 d 的平方近似成反比, 这种所谓的线状电极使得在两边的平行电极板形成两个同样大小的引出流, 相当于把 d 减小一半, 可以预期其引出时间将会极大

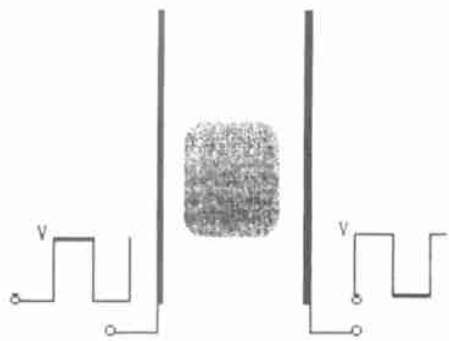


图 3 交替偏压的平行板电极法离子引出
Fig. 3 Ion extraction by alternative biasing parallel plate pole

降低.实验证实,引出时间接近减少了一半,特别是初始离子密度较大(几个 10^{10} cm^{-3})时.

1.4 Π 状电极法^[6]

与交替偏压的平行板电极法类似,以缩短离子运动路程为目的, Π 状电极法应运而生.它同样可以让离子被近的极板收集,但是受到电场分布的影响,收集效率也不够高. Π 状电极法的示意图示于图 4 Yamada等^[7]的研究表明,其引出时间只是传统的平行板电场法的 0.38~ 0.54.但是电子是从具有较高电位值的边界引出,即是等离子体的电子要穿过约 - 1 kV 的势垒,达到上极板,显然是不可能的.所以电子平衡模型不适合描述 Π 状电极法.用粒子模拟的方法得到的结果表明 Π 状电极法的上极板对离子引出的影响是很小的,所以该模型是有局限性的.

1.5 M 状电极法^[7]

M 状电极法是对 Π 状电极法的改进,它比 Π 状电极法更科学合理,弥补了 Π 状电极法的不足,目前还在使用. M 状电极法的示意图示于图 5 Nishio^[7]和 Tsuda等^[11]改变了中间阳极板与极板的比值 $\alpha, \alpha = S_a/S, S_a$ 是中间阳极板的面积, S 是两个收集板的面积之和.当 $\alpha \geq 0.005$ 以后再增加 α 值,离子引出时间不再发生变化,当 $\alpha \leq 0.001$ 时,等离子体中电势增加变慢,离子引出时间比 $\alpha = 0.005$ 时要长.所以得到 α 的最佳值在 $0.001 \leq \alpha \leq 0.005$ 区间.

1.7 RF共振方法^[12]

上面所介绍的离子引出的方法都是在于提高外加电场的电压,改变极板的形状,缩短离子运动的距离.但是这些方法并不能消除对电场屏蔽效应,电场只能在鞘层中存在而不能深入到等离子体内部,离子的引出过程都是鞘层向等离子体不断侵蚀的过程,离子引出流受 Child-Langmuir理论和 Bohm判据等的限制^[12].如果没有屏蔽效应而使电场能够穿透等离子体,离子就能在等离子体内部开始加速,极大地提高离子的引出效率. F. F. Chen和 T. Matsui等按照这种想法,提出 RF共振方法,并已经进行了一些试验.

1.6 改进 M 型电极法^[8]

改进 M 型电极法示于图 6,与 M 型电极法一样,改进 M 型电极法也仍然在使用,它综合了 Π 状电极法和 M 状电极法的特点,进一步提高了离子收集效率.

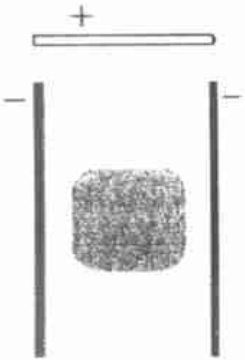


图 4 Π 状电极法离子引出示意图
Fig. 4 Ion extraction by Π electric pole



图 5 M 状电极法离子引出示意图
Fig. 5 Ion extraction by M electric pole



图 6 改进 M 型电极法离子引出示意图
Fig. 6 Ion extraction by improved M electric pole

2 RF法离子引出

2.1 概述

RF共振法是利用一个射频电场,在平行板上加 RF电压,在一个低磁场的作用下,调节至一定的频率,使等离子体发生 S-P共振(鞘层等

离子体共振),这样会产生一个周期性改变大小和方向的电场穿透等离子体,使离子在鞘层内部就得到加速,快速引出离子。

2.2 理论模拟^[13]

计算一组具体的模型:图 7 是一个典型的原子蒸汽激光同位素分离系统的模拟计算图。一束离子被平行板约束起来,典型的极板尺寸是板长 $L=10^{-1} \sim 10^0$ m,高 $H=10^{-1}$ m,极板间距 d 在数量级。电子温度 $T_e=10^{-1} \sim 10^1$ eV,离子温度 $T_i=10^{-1}$ eV,离子密度 $n_0=10^{15} \sim 10^{16} \text{ m}^{-3}$ 。为了促使共振的发生,外加磁场 B 平行于极板方向,大小恰好使得离子束内的电子被磁化,而离子不受影响,约等于 10^3 T。因为 $d \ll d_e, d \gg d_i$ (d_e, d_i 是电子和离子的拉莫尔半径),所以上数据是可靠的。

RF共振法电路原理图示于图 8 RF共振法中,等离子体与电极板之间的鞘层等效为电容 C_s ,而等离子体则等效为并联的电容 C_p 和电感 L_p ,再与电容 C_s 串联,RF共振法等效电路图示于图 9^[12]。

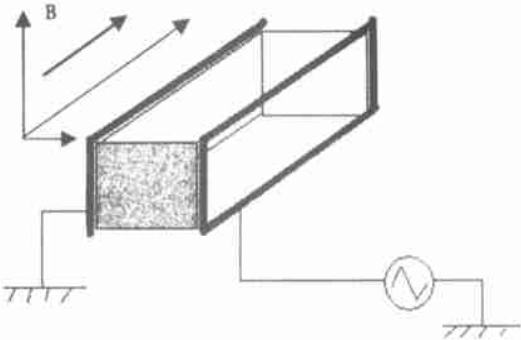


图 7 RF共振法模拟计算图
Fig. 7 Analog calculation diagram of RF resonant ion extraction

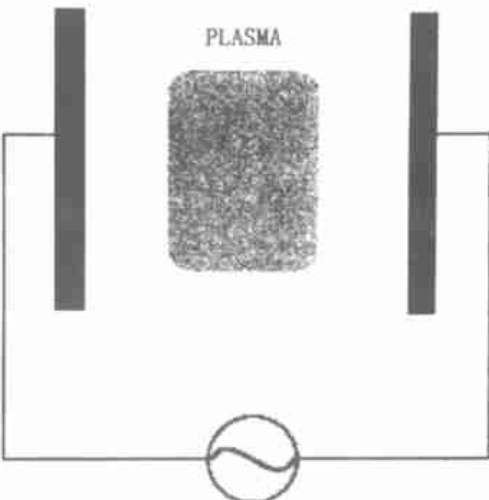


图 8 RF共振法电路原理图
Fig. 8 Principle circuit of RF resonant ion extraction

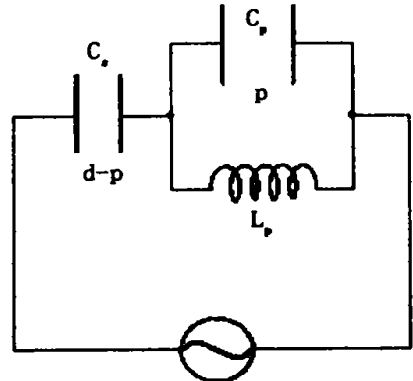


图 9 RF共振法等效电路图
Fig. 9 Equivalent circuit of RF resonant ion extraction

$$\sigma = \frac{\chi_0 S}{d - p} \tag{1}$$

$$\phi = \frac{\chi_0 \chi_0 S}{p} \tag{2}$$

$$R_p = - \frac{p}{k \chi_0 \chi_0 S} \tag{3}$$

上式中 S, p, k 分别是极板面积、离子鞘层厚度和 RF 电压的频率, χ_0 是真空介电常数 χ 和 χ 分别是离子介电常数的实际值和理论值。离子的介电常数 $\chi_p = \chi - j\chi$ 整个系统的阻抗值:

$$z = (j k C_s)^{-1} + (j k C_p + 1/R_p)^{-1} \tag{4}$$

调整 RF 源的频率,使整个电路发生串联共振,这时电路的阻抗 $|Z| = 0$,等离子体中的 RF 电流为最大值,由此产生的大电场有可能能穿透等离子体。通过外磁场下低温等离子体的介电常数公式和串联共振条件,可以求得共振频率 $\omega_{H,L}$:

$$\frac{k_{H,L}^2}{k_{ce}^2} = \frac{1}{2} (1 + Z) \pm \sqrt{\frac{1}{4} (1 + Z)^2 - Z \sin^2 j} \tag{5}$$

其中, $Z = \frac{k_{pe}^2 d - p}{k_{ce}^2 d} (Z > 0)$ (6)

$j = \arctan(p/L)$ (7)

在简化得到 (5) 式时假设了 $m_e/m_i \ll \sin^2 \theta$ 式中, k_e 为电子回旋频率, L 为极板在 z 方向的长度, j 为磁场方向和 RF 共振方向之间的角度。 k_H 和 k_L 分别为式 (5) 取正号和负号时的共振频率。 $f_H = k_H/2\pi$ 在数值上与 f_r 相当, $f_L = k_L/2\pi$ 通常为 10 MHz 量级。随着离子的引出, 等离子体的密度慢慢降低, 将会使 Z 值减小, 从而使共振的频率改变。从式 (5) (6) 看出, k_L 比 k_H 对 Z 的依赖要小得多, k_H 随 Z 减小而减小, 而当 $Z > 1$ 时, 在离子引出过程中, k_L 几乎不变。只有在磁场 $B > 0$ 时 k_L 才存在。令 $Z = 1$, 由 (6) 可得一个标准密度:

$$n_c = \frac{XB^2}{m_e} \frac{d}{d-p} \quad (8)$$

当等离子体密度大于 n_c 时共振就能持续下去。另外, 由于 $k_L < k_H$, k_L 频率的电压通常更容易产生和施加到极板上。

Matsui 通过实验证实了离子体内共振的存在, 同时表明共振频率与电子温度没有关系, 不同能级的原子被电离以后, 其共振频率只和原子本身的能级和质量有关。在他们的实验中, RF 共振方法的离子流大小是传统电场方法饱和离子流的两倍; 得到同样的引出时间, 传统的方法需要加 - 3 kV 的直流电压, 而 RF 共振方法只需要幅度为 70 V 的交流电压和 - 1 kV 的直流电压, 使高压大大减小。从 Matsui 采用的一维 PIC 方法的模拟来看, 电场确实存在于等离子体中 (大小方向周期改变), 电子由于极化漂移和漂移而运动。对于离子引出, 有两个过程, 一个是由于等离子体具有较高的时间平均电位 (每个周期电位平均) 使得离子从两边引出, 另一个是等离子体中具有的时间平均电场使离子加速到电极板。然而他们在相近条件下的实验中所测到的电场的大小却只有模拟值的三分之一。

在弱磁场条件下, 二维 PIC-MCC 模拟中没有发现存在明显的共振现象, 这个结果与 1 维的 PIC 模拟中相当强的共振完全不同, 认为主要是在二维条件下, 磁场中电子在 y 方向的 $\mathbf{E} \times \mathbf{B}$ 漂移不能实现。实际的实验装置比较接近二维模拟的条件, 所以在实验中测得的共振电场远远低于一维模拟的结果。

没有磁场时, 电子不存在 y 方向的 $\mathbf{E} \times \mathbf{B}$ 漂移问题, 所以在二维 PIC-MCC 模拟中观察到了明显的共振。结果显示, 由于产生了共振, 磁场为

0 时的 RF 共振法不论从离子引出时间还是碰撞损失率都是比磁场不为 0 时的 RF 共振法好得多。然而磁场为 0 时的 RF 共振法虽然离子引出时间很短, 但工作频率极高, 在模拟中接近 1 GHz, 这对引出系统的电源和控制系统提出了更高的要求。

在 RF 法离子引出收集, 需要一个较低的磁场 (< 0.01 T) 来加载在收集区域上, 这样 RF 电场才可以令所有处于两个极板之间的离子产生共振。利用离子的特征波长谱线, 可以利用质谱计算公式等理论上估算这一 RF 共振频率。Matsui 也用实验证明了这一点, 他所采用的元素是 Xe, 共振频率测量值为 10 MHz 左右, 和理论值相符合。对于试验中采用的不同元素, 其能量、沸点、以及跃迁温度都不相同, 因而试验条件和选用的激光频率都有不同的要求。

离子引出的测量, 我们设计了两种方法, 一种是利用气体同位素质谱计测量, 另一种是利用引出电流检测法。同位素质谱分析方法能给出高丰度的精确数据, 在试验中的真空条件下, 质谱测量可以给出同位素含量的精确数据并进行跟踪, 缺点是造价高, 探针的安装和设计比较复杂。引出电流测量可以根据引出电流的强弱判断离子共振的时刻, 缺点是无法进行高精度监控。

2.3 实验装置^[14]

如图 10 所示, 振荡器产生的 RF 电压通过放大器放大到 10 V 量级, 再与由极板反射回来的 RF 波进行叠加, 匹配盒使这一过程产生的干扰最小。在匹配之后, RF 电压与负高压 (kV 量级) 进行叠加, 加载到极板上。为了避免 RF 电压对直流电源的影响, 需要用高阻抗线圈来保护直流电源。

初步选取的实验材料为铯, 因为 RF 频率与其跃迁电子能量无关, 根据计算得出的 RF 频率为 13.7 MHz 左右, RF 的频率可以在 0.1~25 MHz 中调整, 电压要求在 -1 000 至 -3 000 V 之间调整。分别用质谱仪、谱分析器和数字示波器进行测量。铯的沸点不高, 不到 300℃, 可以采用电炉丝加热方式使之汽化。

2.4 该装置在质谱分析中的应用

对于试验过程中可能产生的二次离子测量以及离子共振的引出监控, 采用质谱分析是十分有效的手段。试验装置中的质谱仪探头设计也参考了质谱分析中的探针使用方法。考虑采用飞行

时间质谱仪 (TOF/MS), 简单、结实、易与离子源相连, 质量范围宽, 获取数据快速。但是测量中存在“多个离子同时到达”和“死时间”效应, 给分

析带来很大不便, 而且降低了系统线性范围的上限, 因而数据处理需要利用计算机软件修正, 尽可能消除不利影响。

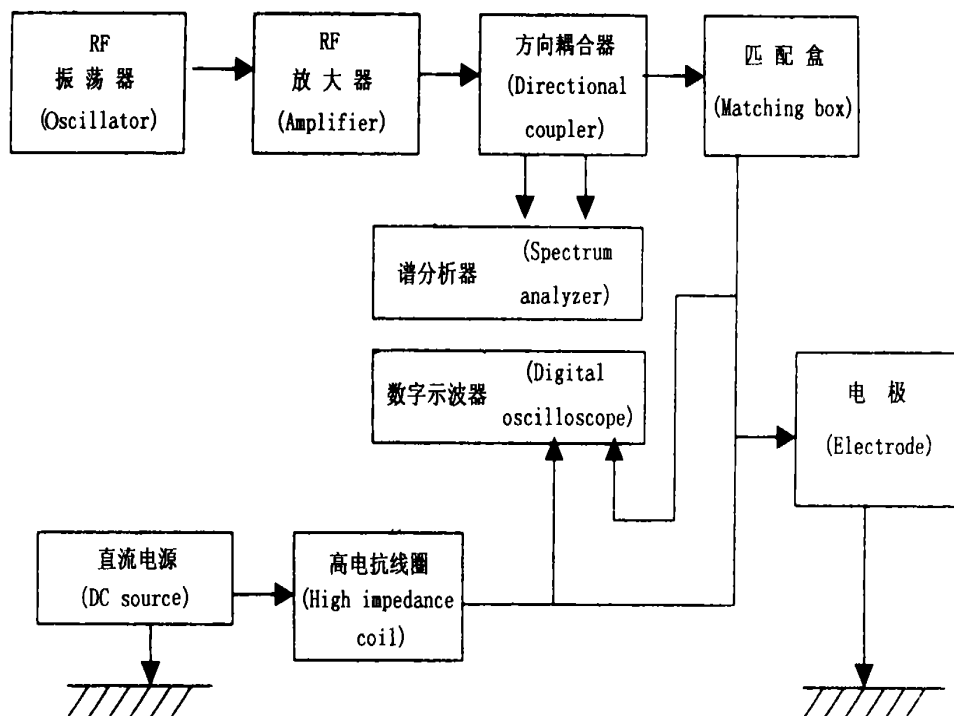


图 10 实验装置示意图^[9]

Fig. 10 Schematic diagram of the rf applied circuit^[9]

3 结 论

上述的各种以平行板为基础的不同改进的离子引出方法都有一些共同的特点, 引出时间随外加电压增高而减小, 而外加电压过高时可能在极板间发生放电现象, 而且外加电压过高时, 引出的离子动能很大, 打在极板上会加重溅射现象。

在 Chen 提出 RF 离子引出收集理论后, Matsui, Shibata 等都进行了模拟实验。通过实验, 确实证明了 RF 方法的可行性, RF 法比其它方法收集效率高, 收集时间短, 也减小了收集所需高压的电压绝对值。

与离子引出方法中传统的平行板电极法相比, RF 共振方法使得引出的离子流增大, 离子引出时间显著缩短。在同样的引出时间下, 共振频率的交流电压的幅度可比平行板电极法的直流电压值小一个量级。就离子引出来讲, 最重要的是减小引出时间和碰撞损失率。从模拟结果可知, 用 RF 共振方法进行离子引出要比通常的平

行板电极法效果好。为了到最佳引出效果, 需对离子引出参数按如下原则进行选^[15]。

- ① 采用较大的 RF 共振电压幅度, 以减小引出时间和损失率;
- ② 采用合适的原子密度 (或等离子体密度), 以达到分离产率与损失率之间的权衡;
- ③ 增加电子温度, 而离子温度则应保持较低状态;
- ④ 极板间距不能过宽, 以免增加引出时间和损失率

参考文献:

- [1] Greenland PT. Laser Isotope Separation[J]. Contemporary Physics, 1990, 31(6): 405~ 424.
- [2] Yan Min, Wang Dewu, Ying Chuntong, et al. Comparison Between the Experimental Results and Numerical Simulation on the Ion Extraction Process[J]. Atomic Energy Science and Technology, 1997, 31(1): 28~ 34.
- [3] Chen FF. Decay of a Plasma Created Between

- Negatively Biased Walls [J]. *Phys Fluids*, 1982, 25(12): 2 385~ 2 387.
- [4] Yamada K, Tetsuka T. Ion Extraction Characteristics on a Barium Plasma Produced Between Alternately Biased Parallel Plate Electrodes [J]. *J Nucl Sci Technol*, 1994, 31(4): 301~ 307.
- [5] Ogura K, Arisawa T, Shibata T. Ion Collection From Laser-Induced Plasma Using Positively Biased Rire Electrode[J]. *Jpn J Appl Phys, Part 1*, 1992, 31(5A): 1 485~ 1 490.
- [6] Yamada K, Tetsuka T, Deguchi Y. Ion Extraction Characteristics on a Barium Plasma Produced Between Grounded Parallel Plate Electrodes and a Positively Biased Upper Plate Electrode [J]. *J Appl Phys*, 1991, 69(12): 8 064~ 8 071.
- [7] Nishio R, Yamada K, Suzuki K, et al. Ion Transport From Laser Induced Metal Plasma to Ion Extraction Electondes [J]. *J Nucl Sci Technol*, 1995, 32(3): 180~ 190.
- [8] Min Yan. Study of Theory and Experiment on Ion Extraction From Laser-Induced Plasma[D]. Beijing tsinghua university, 1994.
- [9] Matsui T, Tsuchida K. Ion Extraction Characteristics From Photoionized Plasma by Radio-Frequency Resonance Method [J]. *J Nucl Sci Technol*, 1997, 34(9): 923~ 929.
- [10] Xiong Jiagui. Study on Ion Extraction From Laser-Induced Plasma[D]. Beijing Tsinghua University, 2000.
- [11] Tsuda S, Matsui T, Nitta H, et al. Evaluation of Minimum Anode Area for Rapid Ion Extraction From Photo-Ionized Plasma [J]. *J Nucl Sci Technol*, 1999, 36(7): 613~ 618.
- [12] Matsui T, Tsuchida K, Tsuda S. Ion Extraction From Plasma by Using a Radio Frequency Resonant Electric Field [J]. *Phys Plasmas* 1996, 3 (12): December 4 367~ 4 375.
- [13] Matsui T, Tsuchida K, Tsuda S. Particle Simulation of Ion Extraction From Plasma by a Radio Frequency Resonance Method [J]. *Phys Plasmas* 1997, 4(10): 3 518~ 3 526.
- [14] Matsui T, Tsuda S, Tsuchida K. Electric Field Distribution in Plasma During Ion Extraction by a Radiofrequency Resonance Method [J]. *Phys Plasmas* 1997, 4(10): 3 527~ 3 532.
- [15] Shibata T, Ogura K. Ion Collection From Resonance-Photoionized Plasma by Applying Radio-Frequency Voltage [J]. *J Nucl Sci Technol*, 1996, 33(11): 834~ 839.

Technique on Ion Extraction in the AVLIS Research

WANG Ya-rui, BAO Cheng-yu

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

Abstract The methods of ion extraction by the parallel plate electric pole, alternative biasing parallel plate electric pole, Π electric pole, M electric pole and radio frequency (RF) are introduced in this paper. The theory and method of radio frequency (RF) resonant extraction is described in particular also. The efficiency of RF resonant ion extraction is better than parallel plate electric pole.

Key words mass spectrometry; technique on ion extraction; review; atomic vapor laser (AVL); parallel plate electric pole; radio frequency (RF)