

电磁法分离高丰度铷-87 及其应用

龙 利, 任秀艳, 毋 丹, 袁 波, 刘苏旭

(中国原子能科学研究院, 北京 102413)

摘要: 铷钟作为北斗卫星导航定位系统的核心部分, 提供高精度的时间基准信号。其精度会直接影响北斗系统的性能, 高丰度的同位素铷-87 是铷钟的核心工作物质, 是决定铷钟精度的重要因素。美、俄均利用电磁分离技术分离铷钟所需的高丰度铷-87 同位素。目前国内同位素电磁分离铷-87 同位素的产量仅能满足小部分需求。随着航天、芯片钟等领域对高丰度铷同位素需求大幅增长, 导致国内铷同位素缺口进一步增加, 未来每年对铷-87 需求可能达数百克至数公斤量级。本研究通过分析量子时频领域的发展现状, 掌握量子时频领域铷钟对铷-87 同位素的需求情况, 据此拟为电磁法分离制备铷同位素的产业化发展提供参考。铷-87 同位素分离制备可通过技术攻关和规模化建设提升分离效率, 降低生产成本, 可为解决铷-87 同位素自主可控提供重要保障。

关键词: 电磁法; 铷同位素; 量子时频; 产业化

中图分类号: TL99

文献标志码: A

文章编号: 1000-7512(2024)03-0302-07

doi: 10.7538/tws.2024.37.03.0302

Electromagnetic Separation of High-abundance Rubidium-87 and Its Application

LONG Li, REN Xiuyan, WU Dan, YUAN Bo, LIU Suxu

(China Institute of Atomic Energy, Beijing 102413, China)

Abstract: The rubidium clock, as the core part of the Beidou satellite navigation and positioning system, mainly provides high-precision time reference signals. Its accuracy will directly affect the performance of the Beidou system. The high abundance isotope rubidium 87 is the core working material of rubidium clocks. Its abundance is an important factor affecting the accuracy of atomic clocks. The high-abundance rubidium-87 isotopes required for the separation of rubidium bells in the United States and Russia, two major isotope producing countries, use electromagnetic separation technology. At present, the production of rubidium 87 isotopes for electromagnetic isotope separation in China can only meet a small portion of the demand. With the arrival of the 5G era, the demand for high abundance rubidium isotopes in fields such as aerospace and chip clocks has significantly increased. It will further increase the gap in domestic rubidium isotopes. It is expected that the demand for rubidium 87 will reach several hundred grams to several kilograms per year in the future. By analyzing the current development status of the quantum time-frequency field and understanding the demand of rubidium clocks for rubidium 87 isotopes in the quantum time-frequency field, it provides guidance for the industrial development and ideas of electromagnetic

separation and preparation of rubidium isotopes in the future. Promoting the industrial development of rubidium 87 isotope separation and preparation as soon as possible. Through technological breakthroughs and large-scale construction, separation efficiency can be improved and production costs can be reduced. This will provide important guarantees for the autonomous control of rubidium 87 isotopes.

Key words: electromagnetic method; rubidium isotopes; quantum time-frequency; industrialization

2017年1月9日,北斗二号卫星导航系统的26台星载铷钟稳定在轨运行,反映出我国在此领域取得重大进展。2020年,北斗系统第五十五颗卫星发射成功,同时也是北斗三号最后一颗全球组网卫星。至此北斗三号全球系统收官之星发射圆满成功^[1],北斗四号预计2035年组网完成,为了实现卫星核心器部件国产化率100%,铷钟所需的高丰度铷-87同位素同样需要自主可控。铷钟是北斗系统的关键部分,其主要是为北斗系统提供高精度的时钟基准信号。其精度对北斗系统的性能会产生显著影响,若铷钟存在1 s误差,定位偏离30 km,目前铷钟的精度达到每3 000年仅有1 s误差。高丰度的同位素铷-87是铷钟的核心工作物质,其丰度是影响铷钟精度的重要因素。自然界中的铷元素含有铷-85和铷-87两种稳定同位素,高丰度的铷-87须经同位素分离获得。

国内目前仅中国原子能科学研究院拥有生产高丰度铷同位素的电磁分离平台,完成了电磁法分离铷-87的工艺研究,研发了国内首个高丰度铷同位素分离平台,研制的高丰度铷-87同位素指标达到国际先进水平。

本研究聚焦铷-87同位素在量子时频领域里的应用情况,通过调研量子时频领域的发展现状,掌握量子时频领域铷钟当前及未来发展对铷-87同位素的需求情况,对铷同位素的产业化发展进行分析,并据此提出未来电磁法分离铷同位素的产业化思路,以期为我国量子时频时钟设备的研制提供核心材料保障。

1 电磁法分离铷-87技术的现状及展望

1.1 分离技术现状分析

在同位素八大制备方法中,同位素电磁分离方法通用性好、单次分离系数高,是目前制备高丰度铷-87同位素切实可行的工艺路线。美国和俄罗斯两个同位素分离大国均使用电磁

法分离制备高丰度铷-87同位素。其原理是,能量相同、质量存在差异的离子在磁场中偏转半径不同(图1)^[2],同位素之间质量 m 有微小的差异,在相同的加速电场和磁场中,不同的同位素偏转半径 R 也会有微小的差异,质量为 m 以及 $m+\Delta m$ 的同位素得以分离。分离操作过程中,需要先将原料加热气化,然后在放电室内电离后产生等离子体,引出后形成有一定能量的离子束,接着在磁场的作用下促使离子束偏转、分离和角聚焦,接收后可获得满足多方面要求的同位素^[3]。

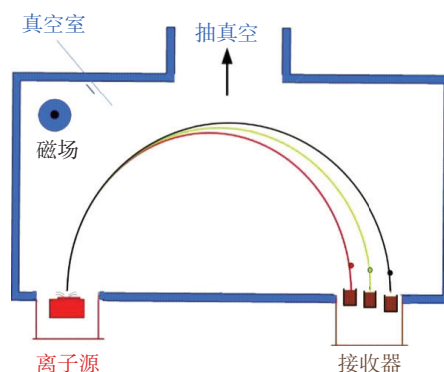


图1 电磁法分离同位素原理图

Fig.1 Principle diagram of electromagnetic isotope separation

在稳定同位素的多种分离方法中,同位素电磁分离法有明显的优势,具体表现为:适用范围广,对各类型的多核素元素的同位素均适用;灵活性大,分离系数大;原料滞留量小,平衡时速度快,短时间内可获得浓缩同位素产品,可满足稳定同位素的高丰度、多品种相关的需求,对某些金属元素,是实现分离的唯一方法^[4]。

美国最早建立了稳定同位素电磁分离工厂Y-12,用于同位素浓缩,供核武器用,但在1998年不再承担铀同位素浓缩后全部停机,随后迫于稳定同位素的重大需求又重启60余台。从1997—2011年的15年间,美国使用了20%的

机时用于分离铷同位素, 占有同位素机时的第五位(图2)^[5], 但生产的铷同位素仍然不满足需求, 因此美国能源部发起了同位素计划, 致力于生产各种同位素, 旨在支持和促进同位素的生产、研究和应用, 包括医学、工业和科学研究, 以满足国内外需求^[6-9]。同时支持同位素分离技术的研究与发展, 其中就包括电磁同位素分离技术。美国在先进同位素电磁分离技术领域, 主要聚焦于高分辨率束流输运、多个真空室耦合、强流离子源方面。通过这些创新技术的应用, 美国同位素电磁分离技术在高分辨率束流输运方面取得了显著的突破, 为同位素分离领域的发展和應用提供了重要的技术支持。

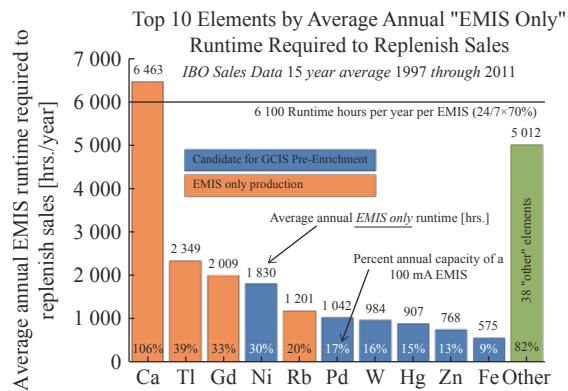


图2 美国1997—2011年电磁法分离同位素每年平均运行时间

Fig.2 The average annual running time of isotopes separated by electromagnetic method in the United States from 1997 to 2011

俄罗斯是稳定同位素生产大国, 建立电磁分离器工厂SU-20, 包含20个电磁分离单元, 同时大力发展一室多束, 离子光学技术。不仅能将同位素丰度浓缩到较高的水平, 还能大量生产, 在分离铷同位素时的原料耗料率达1 g/h。目前, 俄罗斯的稳定同位素在全球销售, 其中铷同位素是重点产品之一^[10-11]。美、俄分离的铷同位素产品情况列于表1^[12-13]。

表1 美、俄分离的铷同位素产品情况
Table 1 Separation of rubidium isotopes from the United States and Russia

同位素	丰度	
	美国	俄罗斯
铷-85	>99.4%	99.4%~99.8%
铷-87	>97.0%	98.34%~99.0%

我国的同位素电磁分离技术起步于上世纪60年代, 中国原子能科学研究院是我国唯一具备同位素电磁分离能力的单位, 共建设了5台电磁分离器, 目前拥有两台同位素电磁分离器^[14]。近年来原子能院在同位素电磁分离领域开展了多项技术攻关工作, 在离子源、束流输运、束流接收技术和分离工艺方面取得了一定的成绩, 通过大力协同、技术攻关, 分离的铷-87(丰度98.3%~99.8%)和铷-85(丰度99.0%~99.8%)同位素已经应用于北斗三代导航卫星, 满足了国防需求。

1.2 铷-87同位素分离产业能力提升分析

同位素电磁分离器是分离铷同位素的关键设施。电磁分离器涉及到众多关键技术的研究, 包括强流离子源技术、高分辨率束流输运技术和高保持率接收等电磁分离新技术的研究。

电磁法分离铷同位素的分离工艺虽然复杂, 但经过数十年的发展, 多次攻关, 自主研发, 已经固化成型, 从制备工作物质到安装离子源、接收器再到分离器的每一步的操作过程以及最后形成产品, 都有严格且成熟的步骤。目前已经形成了国内首个铷同位素分离平台, 分离出的高丰度铷同位素在北斗系统中被用于铷钟。但是, 与目前的数百克及未来的公斤级需求相比, 国内电磁分离高丰度铷-87同位素的产能还远不能满足, 存在较大缺口, 多数只能依赖进口。为了提升同位素电磁分离能力, 需要从技术和规模上进行突破。

技术上, 在保持现有分离能力的同时, 需要研究下一代更加先进、高效、高分辨率同位素电磁分离技术, 重点研究先进电磁分离技术物理机理机制, 从根本上解决分离效率和质量分辨率相互制约的卡脖子问题, 形成国产自主的先进同位素电磁分离技术体系。技术提升重点聚焦于高分辨率束流输运、多个真空室耦合、强流离子源方面。美国聚焦于高分辨率束流输运技术, 开展了新型电磁分离器的研发, 总体分析可知其设计包括了四级聚焦透镜, 通过复杂的束流输运方案来控制离子源的束流形状。这项技术创新使得大张角的强流离子束能够经过聚焦后引入高分辨率二级非均匀磁场中, 可大幅度提高分离效率和精确性, 表现出较高的实际应用价值。这一设计理念的应用使得系统

能够获得更大的流强和更高的分辨率,实现了流强和质量分辨率的双重优化。对于特定性质的同位素,采用专用的离子源产生相应的离子束,可同时提高流强、聚焦性能和稳定性。表面电离离子源是一种专门用于产生碱金属的离子源,尤其是在产生以铷为代表的碱金属同位素离子束时具有优势,可以实现强而稳定的束流发射,同时具有离子流能散小,聚焦性能佳的特点。目前正在研究专用于铷同位素分离的表面电离源,以便进一步增加铷同位素的产能,更好的满足实际应用要求。

在提升电磁分离技术以有效提高单台同位素电磁分离器分离能力的同时,随着国内需求的增加,有必要启动同位素电磁分离器产业化建设。按照每年数百克至公斤级的铷-87同位素需求预测,国内需要建设数十台同位素电磁分离器才能满足需求。为了推动同位素电磁分离能力建设,从产业角度考虑,需要从技术上提升单台同位素电磁分离器的分离能力,同时通

过规模化建设,降低电磁分离器建设和运行成本,有效提升同位素电磁分离的性价比。

通过技术攻关和规模化生产以及不断优化同位素的分离工艺,可实现铷-87同位素产量数倍增长,根据目前调研情况看,预计每年需要数百克至公斤级的铷-87同位素,国内高丰度铷-87同位素的价格为每克十多万元,可预估未来收益达上亿元。

2 高丰度铷同位素在量子时频领域的应用

量子科技将对传统技术体系产生颠覆性影响,代表了新一轮科技革命的主方向。2020年我国政府制定了量子科技研究和应用战略,强调要加强量子科技发展战略谋划和系统布局,量子科技发展布局如图3所示。量子测量-时钟时频技术是此领域的重要分支,极具市场前景,在时间基准领域已经形成较为明确的研究和产业应用方向。

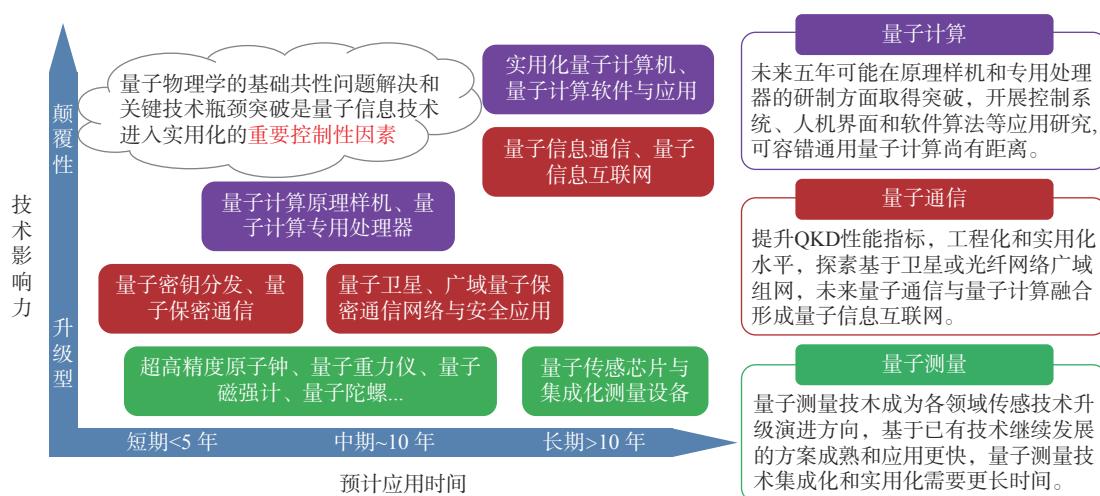


图3 量子科技技术布局图

Fig.3 Quantum technology layout

2.1 量子时钟时频技术发展

时钟和时频同步关系到国防安全、社会生活、科学研究等方面,一些量子精密测量应用依赖原子钟。原子钟的发展最早进入商业化阶段,主要应用有卫星定位导航(GPS、Galileo、GLONASS、北斗)、国防军工(精确制导、作战指挥同步)、时间基准(信息通信、广播电视)等。以定位为例,每一颗卫星都载有多台微波段原子钟,比如铷原子钟,根据信号到达时间给

出准确的定位信息,可以达到相对的不确定性 $10^{-15} \sim 10^{-16}$ 。目前商业化的产品主要是各类微波原子钟(铷钟、氢钟、铯钟)、微波芯片级原子钟以及时频同步类产品,正在商业化的有光钟和芯片级分子钟。全球拥有原子钟技术的国家中,美国和欧洲的商业化公司较多,其他较少,主要掌握在国家计量标准制定及研究的相关院所。在整个量子测量领域,2022年,量子时钟时频市场份额约为4.4亿美元,占比最高

(47%), 预计 2022 年到 2029 年, 复合增长率约为 4.9%, 市场份额占比仍然维持高位(46%), 如图 4 所示^[15]。全球铷原子钟供应商有: VREMYA-CH(俄罗斯)、Stanford Research Systems(美国)、Frequency Electronics(美国)、SpectraTime(瑞士)、AccuBeat(以色列)、航天科工(中国)。

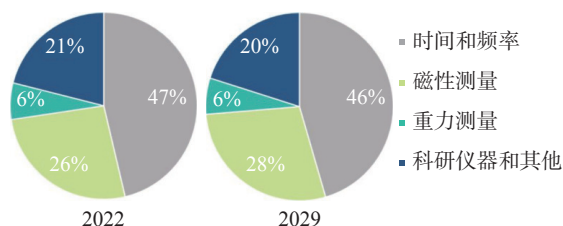


图 4 全球量子精密测量市场份额预测

Fig.4 Global quantum precision measurement market share forecast

随着技术的不断发展, 芯片级原子钟逐步走向应用。芯片级原子钟是在原子钟技术成熟下, 对尺寸小、重量轻、用量大的高精度时钟提出新需求。芯片级原子钟与微惯性测量组合和卫星导航技术相结合, 形成微型导航定位授时单元, 在国防和航天领域都被广泛应用^[16]。2001 年, DARPA 资助科研院所、大学和企业联合研发芯片级原子钟, 目前地质学、地震学、石油勘探、电网运营和金融服务行业已从芯片级微波原子钟获益。

2.2 高丰度铷同位素市场需求分析

量子精密测量产业的驱动因素主要有: 工业互联网、自动驾驶、机器人、信息通信等, 航天领域对时间基准要求高的导航卫星需装载原子钟。同时, 卫星地面测控系统也要使用大量的高精度时频原子钟。芯片原子钟可广泛应用于物联网、5G 通信、智慧城市、大数据等领域, 未来有望成为常用的普通电子消费品。

高丰度铷-87 同位素是地面基站铷原子钟、芯片钟的核心材料, 其丰度对原子钟的稳定度会产生显著影响^[17]。铷频标主要是基于基态超精细能级间的跃迁对微波信号起鉴频作用而获得误差信号, 且利用锁相环路伺服晶振的频率, 使激励信号频率锁定, 从而提高晶振的频率稳定性。铷钟在运行过程中基于能级跃迁理论来测量时间, 原子可基于电子的能级差来吸收电磁能量, 在从高能级转入到低能级过程中, 其可释放出固定频率的电磁波, 对应的频率也即共

振频率, 在检测过程中设置此频率为节拍器, 就可以来测量时间。铷原子钟对铷-87 的丰度要求较高, 因为高丰度的铷-87 同位素可以减少因不同同位素之间的跃迁频率差异引起的不确定性, 从而提高原子钟的精度。对于一些高精度原子钟, 一般要求铷-87 的丰度高于 98%。经分离制备的高丰度的铷-87 比天然丰度的铷-87 研制的铷原子钟, 稳定度高 1.5 个数量级。

近年来我国原子钟行业需求量提升较为明显, 到 2018 年达到 3.35 万套, 同比增长 17.54%; 2019 年中国原子钟行业需求量增长至 3.91 万套, 同比增长 16.72%; 2020 年中国原子钟行业需求量达到 4.07 万套, 同比增长 4.09%。2022 年中国原子钟行业需求量达到 4.68 万套。如图 5 所示^[18]。

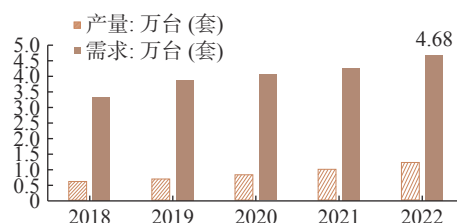


图 5 原子钟行业需求量

Fig.5 The demand for atomic clock industry

整体来看, 我国原子钟行业市场持续扩张, 其中的铷原子钟已经形成了产业化, 广泛应用到军用和民用领域, 占整个原子钟市场份额约 20%。2020 年需求接近 1 万套, 以每套铷钟需要 20 mg 铷-87 计算, 2020 年对铷-87 的需求量约 200 g, 按每年 5% 的增长率估算, 2024 年将对铷-87 的同位素将达到约 250 g, 此需求量仅为铷原子钟领域对铷同位素的需求。

在微弱磁场测量领域, 碱金属磁力仪的研发与产业化也需大量的铷-87 同位素, 尤其是碱金属磁力仪在心磁脑磁测量领域的应用, 一旦产业化, 对铷-87 同位素的需求将实现井喷式增长, 对铷-87 的需求量将超过 500 g。

由于 5G 基站对传输速度要求很高, 每平方公里支持百万终端数的连接是 4G 的 10 倍。假设每 100 个基站需要 1 个中心基站提供时间同步服务, 每个中心基站至少配备 1 台铷原子钟。预计到 2030 年, 中国将建设 1500 万个基站, 至少需要配备 15 万台铷原子钟, 需要铷-87 同位素总量达到数公斤。芯片钟由于小型化,

可以用于物联网、海底基站等领域,对铷同位素的需求也非常大。

由于高丰度铷-87同位素是铷原子钟、芯片钟和碱金属磁力仪的核心材料。随着5G时代的到来,芯片原子钟的批量生产,对铷同位素的需求将越来越大。预计年需高丰度的铷-87在数百克至公斤量级,按照目前价格,其市场规模预计在数千万至亿元量级。

目前获取高丰度铷-87同位素是只可选择电磁分离方法。为了满足量子测量领域对铷-87同位素的需求,需要尽快推动铷-87同位素分离制备的产业化发展。

3 小结

我国在2016年设立“量子调控与量子信息”项目,其中主要的研究内容之一就是量子信息技术,且提出了核心技术、材料、器件领域的发展目标和战略,将量子精密测量定为重点研究领域。高丰度铷-87同位素是量子精密测量用铷原子钟的关键原材料,目前只能通过电磁分离技术分离制备而成,而电磁法分离的高丰度铷同位素在量子测量领域还存在较大缺口,产业化进程急需推进。

根据国内需要建设数十台同位素电磁分离器,才能满足需求。为了推动同位素电磁分离能力建设,从产业角度考虑,通过技术攻关提升同位素电磁分离器的分离能力,从而提高产业技术创新能力,以及规模化建设降低同位素电磁分离器建设和运行成本是推动同位素电磁分离技术产业化的有效途径,从而能够有效提升同位素电磁分离的性价比。随着科技的快速发展,除了电磁法分离高丰度铷同位素,用电磁法分离的稳定同位素的种类及其领域也越来越广泛。

参考文献:

- [1] 北京遥测技术研究所新型压力传感器首飞考核成功[J]. 航天工业管理, 2012(2): 39.
- [2] 任秀艳, 王国宝, 曾自强, 等. CIAE 同位素电磁分离技术的创新与发展[J]. 原子能科学技术, 2020, 54(S1): 316-321.
Ren Xiuyan, Wang Guobao, Zeng Ziqiang, et al. Innovation and development of electromagnetic separation technology of CIAE isotopes[J]. Atomic Energy Science and Technology, 2020, 54(S1): 316-321 (in Chinese).
- [3] 任秀艳, 曹进文, 曾自强. EMIS-170 同位素电磁分离器[C]//第四届全国稳定同位素制备与应用技术交流会. 上海: 国家同位素工程技术研究中心上海稳定性同位素工程技术研究中心, 2017.
- [4] 华明达. 同位素电磁分离器及其所生产的浓缩同位素的应用[J]. 原子能科学技术, 1976, 10(4): 371-377, 370.
Hua Mingda. Isotope electromagnetic separator and application of concentrated isotope produced by it[J]. Atomic Energy Science and Technology, 1976, 10(4): 371-377, 370 (in Chinese).
- [5] NSAC Isotopes Subcommittee. Meeting isotope needs and capturing opportunities for the future: The 2015 long range plan for the DOE-NP Isotope Program[R]. America: [s. n.], 2015.
- [6] Bell W A, Tracy J G. Stable isotope separation in calutrons: Forty years of production and distribution[R]. Oak Ridge, TN (United States): Oak Ridge National Lab, 1987.
- [7] Egle B J, Hart K J, Aaron W S. Stable isotope enrichment capabilities at Oak Ridge National Laboratory[J]. Journal of Radioanalytical and Nuclear Chemistry, 2014, 299(2): 995-999.
- [8] Jeffries B D. Development of a novel titanium thermal ionization cavity source for electromagnetic radioisotope separation of samarium and other lanthanide isotopes[D]. Columbia: University of Missouri Libraries, 2022.
- [9] Jeffries B D, O'Donnell V, Norgard P, et al. Experiments with a prototype titanium hot cavity surface ionization source intended for electromagnetic separation of radioactive samarium and other lanthanide elements[J]. Applied Radiation and Isotopes, 2021, 170: 109621.
- [10] Kaschejev N A, Polyakov L A, Tunin V V. Stable isotope production in the former USSR by electromagnetic separation techniques[J]. Nuclear Instruments and Methods in Physics Research Section A: Accelerators, Spectrometers, Detectors and Associated Equipment, 1993, 334(1): 27-32.
- [11] Talip Z, Borgna F, Müller C, et al. Production of mass-separated erbium-169 towards the first preclinical *in vitro* investigations[J]. Frontiers in Medicine, 2021, 8: 643175.
- [12] U. S. Department of Energy. The availability of products and services varies, and the distribution of some products by the NIDC [R]. US: National Isotope Development Center, 2024.
- [13] ROSATOM State Corporation. Supplier of Russian

- isotope products [R]. [S.I]: Enterprise of Rosatom State Corporation, 2024.
- [14] 任秀艳, 曾自强, 吴灵美, 等. 电磁法分离铷同位素用接收器的研制[J]. [原子能科学技术](#), 2018, 52(12): 2308-2312.
- Ren Xiuyan, Zeng Ziqiang, Wu Lingmei, et al. Research of receiver for separating Rb isotope[J]. [Atomic Energy Science and Technology](#), 2018, 52(12): 2308-2312 (in Chinese).
- [15] 2022 全球量子精密测量产业发展报告[R]. 芜湖: 未来智库, 2022.
- [16] 刘雅丽, 李维, 武腾飞, 等. 芯片级原子钟的研究进展[J]. [计测技术](#), 2021, 41(4): 7-12.
- Liu Yali, Li Wei, Wu Tengfei, et al. Research progress of chip scale atomic clock[J]. [Metrology & Measurement Technology](#), 2021, 41(4): 7-12 (in Chinese).
- [17] 中国原子能科学研究院. 一种同位素电磁分离方法: CN202011640254.1[P]. 2020-12-29.
- [18] 2023 年中国原子钟行业产业链、产量、需求量及市场规模分析 [R]. 北京: 共研产业研究院, 2024.