

我国激光分离同位素的研究进展

匡 一 中

(四川大学激光物理与化学研究室)

提要: 对我国激光分离同位素的研究进展作了回顾和展望。我们已经成功地完成了同位素氘、氚、锂、硼、碳、硫、铀的浓缩实验, 激光分离同位素的理论研究也取得了有价值的结果。

Research progress of laser isotope separation in China

Kuang Yizhong

(Laboratory of Laser Physics and Chemistry, Sichuan University)

Abstract: A general review is made on the past and the future of the research progress of laser isotope separation in China. Enrichment experiments on such isotopes as D, T, Li, B, C, S, U have been conducted successfully, valuable progress on the theoretical aspect has also been made.

七十年代初期国外报道了 S. W. Mayer 用波长 $2.7\mu\text{m}$ 的氟化氢激光器照射甲醇-溴分子体系, 发现残留物中氘甲醇浓缩了, 这是利用激光选择性振动受激光化反应浓缩氘首次成功的实验。随后, 红外激光多光子离解 BCl_3 、 SF_6 分子分离硼、硫同位素的实验亦获成功。从那时起, 我国就十分关注这一发展动向, 并于 1976 年利用 TEA CO_2 激光完成了硫同位素的激光分离^[1,2]。随后, 相继对硼、氘、氚、铀、锂等同位素进行了激光分离实验(详见表 1)。

据《中国激光》、《科学通报》等 13 种全国性学术刊物的不完全统计, 1976 年至今共发表有关激光分离同位素的学术论文约 70 篇; 其中同位素分离实验占 26.2%; 离解、反应

机理与检测等占 43%; 专用激光器 10.8%; 理论与综述等 20%。有相当一部分论文曾参加北京(1981)和广州(1983)国际激光会议的学术交流。

在起步之后的头三年内, 利用国内器件与技术, 红外多光子离解 SF_6 、 BCl_3 分子达到较高浓缩系数, 在实验室内分离制取到毫克量级的硫、硼同位素(水解还原法萃取得 $1\text{mg } ^{34}\text{S}$; 冷却收集 BCl_3 离解产物累积达几十毫克)^[3,4]

与此同时, 基础研究开始活跃起来, 提出了一些有价值的见解。以多维非简谐振子模型分析了强红外激光场作用下多原子分子的多光子离解, 计算出的离解阈值、频率“红

收稿日期: 1984 年 9 月 15 日。

表 1 我国激光分离同位素试验的概貌

介质的组份	激光辐照条件	分离试验结果	论文发表(或收到)时间、作者单位	文献
六氟化硫+氩 压强 1 Torr (1:10)	TEACO ₂ 自然振荡线, P(20) 2~4 J, 1.7 GW/cm ² , 100~200ns 脉冲 8000 次(0.5~1.5 Hz)	$\beta \approx 58$ (³⁴ SF ₆ / ³² SF ₆)	1976.7 安徽光机所 { 激光分离同位素 中国科技大学 { 协作组	[2]
六氟化硫+氩	增益竞争法稳频 TEA CO ₂ 激光, P(20)、2 J、90 ns, 脉冲 2200 次	最高分离系数 36 ³² SF ₆ 离解速率 3.5 × 10 ⁻³	1976.6 中国科学院电子所五室 二机部三院	[1]
六氟化硫+氩 1.14 Torr (1:7)	TEA CO ₂ 自然振荡线 P(20) 3.5 J、100 ns, 脉冲 800 次	$\beta \approx 7$	1978.2 四川大学激光物理 激光化学研究室	[28]
六氟化硫+氩 (0.4+4) Torr	TEA CO ₂ 激光, P(20)、2 J 100 ns, 10 ⁹ W/cm ² , 脉冲 10,000 次	$\beta \approx 2.08$ 水解还原法萃取 ³⁴ S, 1 mg。	1979.2 中国科技大学化学物理教研室	[3]
六氟化硫+氩 6.18 Torr (1:10)	TEA CO ₂ 激光, 1.7 J, 脉冲 3000 次, 100~200 ns (0.5~1 Hz)	$\beta \approx 386$	1980.11 上海有机化学研究所	[29]
六氟化硫+氩 0.2+0~1.8 Torr	TEA CO ₂ 激光 1~1.5 J 100 ~200 ns 脉冲 800 次	$\alpha \approx 17.3$	1981.11 二机部三院一室 中国科学院原子能所	[30]
三氯化硼+空气 (4+8) Torr	TEA CO ₂ 激光 P(16)、P(18) 0.8 J, 10 ⁹ W/cm ² , 辐照 40 分 (1.6 Hz)	浓缩系数 2.8(红外光谱) 累积分离产物 收集总量达几十毫克	1978.11 物理研究所 同位素研究小组 盐湖研究所	[4]
三氯化硼+氧 15 Torr (1:7.5)	TEA CO ₂ 激光器自然振荡线 1~10 J ~100 ns, 脉冲 2079 次(1 Hz)	$\beta \approx 1.42$	1978.2 四川大学激光物理激光 化学研究室	[28]
三氯化硼+氩 0.36 Torr (4:1)	TEA CO ₂ P(20) 激光 2 J ~100 ns, 10 ⁹ W/cm ²	$\beta \approx 1.56$	1978.12 中国科技大学化学物理教研室	[31]
三氯化硼+空气 (0.5+5.5) Torr	选支 TEA CO ₂ 激光 P(26) “红移” 21 cm ⁻¹ 1 J 脉冲 9000 次	$\beta \approx 5.8$	1981.8 中国科学院物理研究所	[32]
三氯化硼+空气	CO ₂ 激光 10 P(30) 线 (934.9 cm ⁻¹) 10 B(26) 线 (979.7 cm ⁻¹)	$\beta \approx \begin{matrix} 6.2 \\ 1.8 \end{matrix}$	1981.11 中国科学院物理研究所	[33]
甲 醛 气压 20 Torr	TEA CO ₂ 激光 944.18 cm ⁻¹ 6.25 J, ~100 ns, 脉冲 300 次	氘浓缩系数 67	1978.7 四川大学物理系光学专业	[39]
氟里昂-123 2.1 Torr	TEA CO ₂ 激光 2 J, 100 ns, 脉 冲 70 次	$\beta \approx 4.61$ [F-123(D)/ F-123(H)]	1980.3 中国科学院有机化学研究所	[40]
氟里昂-123 2 Torr	TEA CO ₂ 激光 1~4.5 J/cm ²	H/D 分离系数 18	1981.11 复旦大学激光化学研究室	[9]
氟里昂-123 0.5 Torr	双频 CO ₂ 激光 P(20)[944 cm ⁻¹] P(26) [938 cm ⁻¹] (4.2 + 12.6) J/cm ² , 脉冲 400 次。	$\beta \approx 1600$ (浓缩气)	1981.11 四川大学激光物理激光 化学研究室	[10]
氟里昂-123 0.75 Torr	TEA CO ₂ 激光 P(20) 1.0~ 1.6 J, 10 J/cm ² , 200 ns, 脉冲 1350 次	氘分离系数 1.38	1983.11 中国科学院原子能研究所	[13]
三氟甲烷+氩 200 mTorr + 20 Torr	光栅谐调 TEA CO ₂ 激光 970 cm ⁻¹ , 0.9 J, 150 ns, 20 J/cm ² , 脉冲 1000 次	氘浓缩系数 1.2 × 10 ⁴	1981.9 四川大学激光物理激光 化学研究室	[15]

(续表)

介质的组份	激光辐照条件	分离试验结果	论文发表(或收到)时间、作者单位	文献
三氟甲烷 200 Torr	光栅谐调 TEA CO ₂ R (14) 激光短脉冲, 0.2~0.4 J, 10~15 ns (等离子开关技术), 600 次	$\beta \approx 7600^{+1000}_{-1500}$ (浓缩氙)	1981.11 四川大学激光物理激光化学研究室	[16]
锂原子束(600°C) 准直比 450:1	6708 Å 染料激光 90 mW, 线宽 6 MHz, 光斑 ϕ 2mm, 70 mW/cm ²	$\beta \approx 2.5$ (空间分离 ⁷ Li)	1981.8 中国科学院盐湖研究所	[17]
铀			1979. 四川大学激光物理激光化学研究室	[19]

此系不完全统计, 表列数据仅供参考

移”同位素选择效应等与 SF₆ 分子的实验数据基本相符^[5]。通过对激光分离同位素主要过程的动力学模型的数学分析, 导出了为获得高选择性所必须满足的动力学条件, 对 SF₆ 分离实验的经验规律给出了理论解释, 指明了实验规律的适用范围^[6,7]。对强红外场中 BCl₃ 分子可见荧光的动力学以及光、声、光效应进行了实验观测和理论研究^[8]。

八十年代我国激光分离同位素步入一个新的发展阶段。对六氟化硫、三氯化硼、三氟甲烷、氟里昂 123 以及多种醇、烯类化合物分子和锂原子等的光物理和光化学特性开展了广泛的实验和理论研究。探索研究了单频法、双频法、光化学法、光压法以及高压、短脉冲辐照等多种激光分离同位素方案。化学样品的制备、处理、检测技术有了相应进展, 可调谐 TEA CO₂ 激光器 16 μm 激光器和铜蒸气激光器等专用器件的性能不断提高。

探讨了氟里昂分子 (F-123^(H), F-123^(D)) 间能量交换对富集系数降低所产生的影响。观测到在 4.5 J/cm² TEA CO₂ 激光照射下, F-123^(D) 强烈分解而 F-123^(H) 并不分解, 在二者的混合气体中 (2 Torr), 二组份随激光照射次数的增加均有强烈的分解; 适当降低能量密度 (1 J/cm²), 分解选择性增高^[9]。通过单频法 (944 cm⁻¹ 或 938 cm⁻¹) 辐照与双频法 (944 cm⁻¹ 和 938 cm⁻¹) 辐照 F-123 分离氙、氢同位素的对比实验证明, 双频法具有分解选择性

高、能量利用率高等优点^[10]。研究了两种 F-123 异构体的同位素位移及多光子离解的通道与产物^[11] 进行了选择性地打断碳-碳键的实验^[12]。以氟化 F-123 为介质, 探索了激光法清除水(重水)中有害氙的技术途径, 并取得初步进展^[13], 这一新技术在反应堆废水处理方面有应用价值。

对激光分离氢、氙同位素的经济性进行了分析^[14], 结论是: 如欲使激光法经济效益超过现行化学双温交换法, 应满足如下基本条件: (1) 分离操作压力 > 7.6 Torr, 最理想压力为 100 Torr 或常压; (2) 使用廉价的 CO₂ 激光器; (3) 选择性 $s \cdot \beta \geq 7000$ 。有关激光辐照三氟甲烷浓缩氙的实验已取得令人鼓舞的肯定结果^[15,16]。低气压 (200 mTorr) 浓缩系数达到 10⁴ 量级; 在高压 (200 Torr) 采用短脉冲激光辐照, 浓缩系数仍可达到 7000, 表明三氟甲烷体系已部分达到文献 [14] 所说的三个条件, 预计对这类介质的研究将向工业实用的方向发展。

以光压法实现了 ⁷Li 和 ⁶Li 原子束的空间分离^[17]。理论证明: 当适当选择调制函数参数, 序列脉冲比连续激光更有效地降低原子速度与动能。如加长相互作用区, 低强度序列脉冲可使基态有超精细结构的原子实现同位素空间分离^[18]。

激光法分离铀、钚、氙、氡等同位素对开发能源有重大影响。例如, 激光法浓缩铀的电能耗为现行扩散法的 5~10%。可用激

光法回收处理扩散法残留的 UF_6 贫料(因此即使不开新矿也可增加 1/3 的核能源), 铀同位素的价格也比扩散法低几倍。早在七十年代中期, 我国就开始有计划地研究激光分离铀同位素, 1979 年以激光化学法取得高于现行扩散法和化学法的铀同位素分离系数。对激光分离铀同位素的方案, 特别是 UF_6 分子体系的红外多频场离解, 激光诱导化学反应以及铀原子蒸气法等方案进行了深入的分析、研究。我国第一台光泵 CF_4 $16\ \mu m$ 激光器(25mJ, 150ns)于 1981 年投入运行^[19]; 另一台 CF_4 激光器在 $612\sim 646\ cm^{-1}$ 范围(8 条谱线)可调谐输出^[20]。对激光分离铀实用化有希望的仲氢喇曼 16 微米激光器已研制出来。分子振动激发态的红外光谱和紫外光谱已获得初步成果。测定了 $400\sim 4000\ cm^{-1}$ 范围 UF_6 的红外吸收光谱^[21], 记录了全部较强的八条吸收带^[22], 对基频 γ_3 的结构, P 、 Q 、 R 支的中心频率进行了仔细测量, 测得“结构”宽度 γ_{PR} 为 $11\ cm^{-1}$ 。对 UF_6 分子多光子离解的实验研究取得了积极的成果; 测得 $16.25\ \mu m$ 单频辐射照下 UF_6 离解阈值为 $\sim 1\ J/cm^2$ (分压: 1 Torr, 温度 $18\sim 20^\circ C$), 观测到 $UF_6\sim H_2$ 混合体系的光分解产额显著增加, 但阈值并不降低^[23]。以 $16\ \mu m$ 和 $9.3\ \mu m$ 双频激光辐照 UF_6 时分解产额比 $16\ \mu m$ 单频辐照时增大 2~3 倍^[24]。观测到 UF_6 在加 SF_6 和 H_2 时的光敏反应, 在 $935\ cm^{-1}$ 低能密 ($0.44\ J/cm^2$) CO_2 激光辐照下, UF_6 分子有较高离解速率^[25]。以 $10.6\ \mu m$ TEA CO_2 激光辐照硝酸铀铯萃取体系比无激光照射时铀浓度最大增加 44%^[26]。

对于重同位素的激光分离, 特别是铀, 要同时获得高选择激发, 高浓缩系数, 高激发速率, 高能量利用率, 高产率等条件, 比轻同位素要困难很多。目前对铀原子蒸气体系来说, 解决上述问题比较有希望的方法是多频场多光子共振光电离法, 对六氟化铀分子体系而言, 是多频场多光子共振离解法。有关

这方面的实验研究工作, 只是对氢、碳、锂等同位素报道过一些类似的实验结果, 对铀只能作参考。采用多频场多光子共振与超短脉冲相干激发相结合的模式^[27], 证明了获得粒子数几乎完全反转的条件, 可获得高选择性激发和高激发速率。采用长脉冲(或连续波)多频场多光子共振激发, 证明连续波多光子共振激发, 仍能获得很高的选择性, 但产率随功率增加而下降, 如果这一缺点能找到方法弥补, 由于连续波分离方案在工业应用的巨大优点, 仍不失为有价值的途径。

激光分离铀同位素, 是一项综合性的尖端技术, 为了较快地掌握这项科学技术并将其推进到工业实用阶段, 有许多重要课题急待研究解决。其中最关键的问题是研制成对激光分离铀同位素有实用价值的铜蒸气泵染料调频激光器(原子法)和连续调谐的 16 微米激光器(分子法), 这些激光器必需达到高稳定性、长寿命、高重复频率、高平均功率、高效率、廉价等一系列特殊指标。此外, 铀蒸气原子束产生, 安全防护; 六氟化铀低温超声分子束及分离过程中的激光化学问题; 高选择性高分离系数的分离方法; 产物的收集处理; 这些都是激光分离铀同位素实用化必需解决的科学技术关键。

激光分离同位素促成了边缘学科——激光化学的产生和发展, 它为引发控制和研究化学反应开辟了新的途径。微微秒激光技术, 调谐激光技术与分子束技术相结合, 开拓了微观化学动力学和分子超快速过程研究的新领域; 获得了分子及大分子团的高分辨激光光谱, 并对其结构和动力学过程有了新的认识; 伴随激光分离同位素发展起来的共振电离光谱, 为分析化学和材料科学提供了高灵敏度高选择性的方法。

参 考 文 献

- [1] 中国科学院电子所五室紫外预电离激光组;《激光》, 1978, 5, No. 5~6, 13.

- [2] 中国科学院安, 徽光机所中国科技大学激光分离同位素协作组;《激光》,1977, 4, No. 6, 35; 同[1];《中国科技大学学报》, 1976, 6, No. 1~2, 156.
- [3] 孔繁放, 俞书勤等;《科学通报》, 1980, No. 10, 450.
- [4] 中科院物理所, 盐湖所同位素研究小组; 同[1], 14.
- [5] 甘子钊, 杨国楨等; 同[1], 15.
- [6] 马兴孝; 同[1], 17.
- [7] 马兴孝, 胡照林; 同[1], 17.
- [8] 徐积仁, 唐福海等; 同[1], 14;《科学通报》,1979, No. 4, 153.
- [9] 李长林, 穆国融;《应用激光》,1982, 2, No. 1, 29.
- [10] 潘大任等; 同[9], 30;《激光》, 1982, 9, No. 3, 152.
- [11] 杨静然等; 同[9], 36.
- [12] 杨立书等;《中国激光》,1983, 10, No. 8~9, 523.
- [13] 李儒顺等;《核化学与放射化学》, 1983, 5, 297.
- [14] 张临阳;《应用激光》,1984, 4, No. 3, 97.
- [15] 李育德等; 同[9], 30;《激光》, 1982, 9, No. 9, 562.
- [16] 杨志成等; 同[9], 32;《光学学报》,1983, 3, 724.
- [17] 李 丽等; 同[9], 33;《激光》, 1982, 9, No. 9, 557.
- [18] 栾绍金, 谭维翰;《激光》,1982, 9, No. 1, 1.
- [19] 蹇庄华; 同[9], 25.
- [20] 庄斗南等;《中国激光》,1984, 11, No. 3, 186.
- [21] 复旦大学物理二系;《原子能科学与技术》, 1983, No. 5, 588.
- [22] 宋文忠等; 同[9], 49.
- [23] 刘保华等;《应用激光联刊》, 1982, 2, No. 6, 1.
- [24] 同[23], 1983, 3, No. 1, 6.
- [25] 秦启宗等;《核科学与工程》, 1983, 3, No. 3, 239;《中国激光》,1983, 10, No. 8~9, 524.
- [26] 徐宝裕;《激光》, 1982, 9, No. 5, 23;《中国激光》, 1983, 10, No. 6, 354.
- [27] 匡一中, 代特力;《光学学报》,1983, 3, 207.
- [28] 四川大学激光物理、化学研究室;《四川大学学报》(自然科学版),1978, No. 2~3, 55; 同[1], 18.
- [29] 严兆明等;《激光》, 1980, 7, No. 11, 52.
- [30] 李儒顺等; 同[9], 40.
- [31] 胡照林等;《科学通报》, 1980, No. 17, 786.
- [32] 朱沛然等;《激光》, 1981, 8, No. 10, 20.
- [33] 朱文森等; 同[9], 34.

《量子电子学》征订启事

《量子电子学》是由中国科学院安徽精密光学机械研究所、中国科技大学和长春光机学院联合倡议, 经安徽省委批准并由安徽光学学会主办的国内公开发行的综合性学术刊物, 它面向全国各有关高等院校、研究单位和有关企业, 接受各地来稿。内容兼顾应用和基础, 着重反映在量子电子学领域中的应用研究和基础研究方面的成果(包括阶段性成果), 也刊登在国民经济建设中的开发应用新成果。包括:

各种相干辐射(从微波、可见直到 X 射线和 γ 射线)现象的机制;

激光物理和量子光学方面的理论和实验;

激光材料、器件和激光器系统;

激光和激光光谱学在其它学科(如固体物理、等离子体物理、力学、声学、化学、生物学和医学等)的应用;

微波波谱学的研究进展。

稿件形式有学术论文、研究通讯、教学研究、综述评论和简讯等。

《量子电子学》现为季刊, 由钱临照、王天眷、张志三和邓锡铭等教授任顾问, 刘颂豪教授任主编。编辑部设在中国科学院安徽光机所。

《量子电子学》每期约 12 万字, 定价 0.80 元, 全年共计 3.20 元(包装及邮费在内)。

1985 年《量子电子学》将由本编辑部独立发行, 欢迎订阅。凡属单位订阅者, 可来函向本编辑部索取订书单; 个人订阅者可直接汇款。本编辑部通讯地址: 安徽省合肥市 25 号信箱《量子电子学》编辑部。

《量子电子学》编辑部