

文章编号: 0253-2239 (2001) 03-0262-05

# 激光抽运极化原子束磁偏转铀浓缩方案\*

黄学人 朱熙文 梅刚华 钟 达

(中科院武汉物理与数学研究所波谱与原子分子物理国家重点实验室, 武汉 430071)

**摘要:** 将激光抽运选择性极化原子束磁偏转方案用于铀同位素浓缩, 考察了铀原子基态各子能级的磁偏转特性, 提出了选择性光抽运极化的实验方案, 讨论了可能得到的浓缩结果。

**关键词:** 光抽运; 同位素浓缩; 原子束极化

中图分类号: TN249. O652. 6 文献标识码: A

## 1 引 言

近 20 年来, 激光同位素浓缩研究得到了高度重视和迅速发展。已经提出和验证过多种原理性方案, 如选择性化学反应<sup>[1]</sup>、原子选择电离<sup>[2]</sup>、分子多光子离解<sup>[3]</sup>和光压偏转<sup>[4]</sup>。其中原子选择电离法经过大量的基础性研究和关键技术突破后, 已用于铀的中试生产。由于铀浓缩的实际需要和激光浓缩法的效益明显优于气体扩散和离心法, 因此更为经济有效的激光浓缩方案仍在发展和探索。

激光抽运选择性极化原子束磁偏转方案<sup>[5]</sup>, 是这种探索的一部分。该方法具有以下显著的优点。它不涉及高激发态的激发和电离, 所需的激光光强甚低, 可大大降低对激光光源的要求和将来用于工业生产时的成本; 只需了解同位素基态和极少数低激发态能级和谱线, 无需高激发态的大量数据, 减少了基础性研究的工作量; 决定浓缩效果的基态原子“极化”状态可以长期保持, 磁铁偏转技术简便易行, 因而显示了它的发展潜力。我们分别采用染料激光器和半导体激光器, 对原子角动量  $J = 1/2$  的碱原子 Li<sup>[6]</sup>、Rb<sup>[7]</sup> 以及高  $J$  的稀土原子 Eu ( $J = 7/2$ )<sup>[8]</sup>, 进行了方案的实验验证, 得到良好的浓缩效果。如 <sup>85</sup>Rb 的丰度由 72. 8% 提高到 98%, <sup>87</sup>Rb 的丰度由 27. 2% 增至 83%<sup>[7]</sup>。本文将此方法推广于更有实用价值的铀同位素浓缩。

## 2 基本原理和磁偏转特性

极化束磁偏转浓缩法的要点是: 通过不同的激

光对原子束中各同位素的原子进行选择性的激光抽运, 将需浓缩的同位素和其余同位素原子分别正、负极化 (极化的定义见后), 然后使极化原子束通过二极或六极选态磁铁, 由于正、负极化原子在通过磁铁的非均匀磁场时的不同偏转特性而出现空间分离, 由此实现同位素浓缩。

铀的稳定同位素有 <sup>234</sup>U、<sup>235</sup>U 和 <sup>238</sup>U, 丰度分别为 0. 0058%、0. 71% 和 99. 28%。<sup>234</sup>U 的丰度太小, 对浓缩的影响实际上可忽略。为了得到 <sup>235</sup>U 的浓缩, 只需将 <sup>235</sup>U 正极化和 <sup>238</sup>U 负极化。下面将根据对两种铀同位素原子各子能级的磁偏转特性的分析, 讨论应该使原子集居到哪些子能级以满足相应的极化条件, 以及采取何种有效和可行的选择性光抽运方案达到所要求的子能级集居。

<sup>235</sup>U 和 <sup>238</sup>U 原子基态为  $5f^3 6d 7s^2 5L_6^0$ ,  $J = 6$ , 核自旋  $I$  分别为  $7/2$  和  $0$ 。<sup>238</sup>U 无超精细分裂, 在强、弱磁场中均按  $m$  分裂为 13 个塞曼 (Zeeman) 子能级, 而 <sup>235</sup>U 则显示复杂的超精细结构。在弱磁场下, <sup>235</sup>U 的子能级由  $(F, m_F)$  标记, 104 个子能级分属 8 个不同  $F$  能级 ( $F = 5/2, 7/2, \dots, 19/2$ ),  $F$  能级的间距和次序已由实验测得<sup>[9-12]</sup> (见图 1)。在选态磁铁中, 当磁场很强足以使  $I$ - $J$  去耦时, 子能级按  $(m_J, m_I)$  分组, 同一  $m_J$  的所有  $m_I$  子能级构成一组。 $g$  根据 <sup>235</sup>U 原子基态的哈密顿量表式计算出所有子能级能量随磁场强度的变化, 由此得知弱磁场中的  $(F, m_F)$  子能级与强磁场中的  $(m_J, m_I)$  子能级的对应关系, 以及在中等磁场区的演化过程。但由弱磁场中的  $F$  能级顺序和关系式  $m_F = m_J + m_I$ , 可很方便推算出两种表象的子能级间的对应关系如图 1 所示。

$J$  异于零的原子在非均匀磁场中的偏转行为已

\* 国家自然科学基金 (19674065) 资助项目。

收稿日期: 1999-07-05; 收到修改稿日期: 2000-01-14

有详细研究<sup>[13-16]</sup>。原子在非均匀磁场中所受偏转力的大小和方向由原子的有效磁矩值及磁场梯度决定。对甚强磁场, 有效磁矩  $\mu_{\text{eff}} \approx -m_J \mu_B$ ,  $\mu_B$  为玻尔磁子。故当原子束沿磁铁轴向穿过甚强的非均匀磁场区后, 受力偏转的方向和大小因  $m_J$  而异。对二极磁铁,  $m_J = 0$  的原子沿轴向穿过 (无偏转),  $m_J > 0$  和  $m_J < 0$  态的原子各向轴的一边偏转。对四、六极 (以及更高阶的) 磁铁,  $m_J = 0$  态原子仍

不偏转,  $m_J > 0$  态的原子向轴向聚焦,  $m_J < 0$  态原子偏离轴向而发散, 聚焦的距离和发散的程与  $m_J$  的绝对值有关。如图 2 所示, 将收集器放在适当的位置, 就可以收集到绝大部分  $m_J \geq 0$  态原子, 而  $m_J < 0$  的原子基本上被排除在接收器外。因此, 只要将<sup>235</sup>U 原子集居到所有的  $m_J \geq 0$  态而<sup>238</sup>U 原子集居到所有的  $m_J < 0$  态即可在收集器中得到浓缩的<sup>235</sup>U。

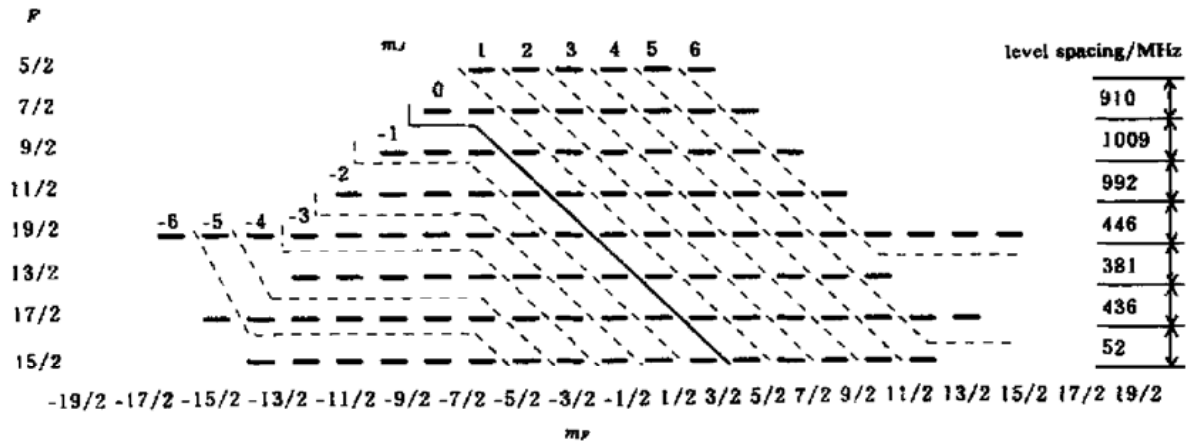


Fig. 1 The energy-level diagram of <sup>235</sup>U ground state  $5f^3 6d^{10} 7s^2 5L_6^0$ , the distribution of the sub levels ( $F, m_F$ ) of ground state in the weak magnetic field are showed in this Figure, the numbers at the rightside are level spacing in MHz (not to scale), the sub levels in the strong magnetic field are grouped by the value of  $m_J$  with  $m_I = m_F - m_J$

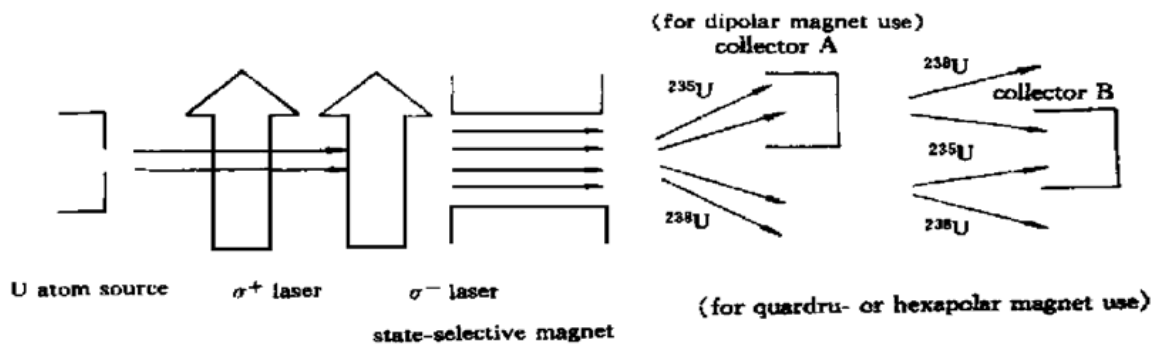


Fig. 2 The schematic of isotopic enrichment via magnetic deflection of an atomic beam polarized by laser pumping

原子极化通常由  $P = \sum_{m_J} m_J \rho_{m_J} / J$  表示, 式中  $\rho_{m_J}$  为  $(J, m_J)$  态的原子相对集居数。因  $\sum_{m_J} \rho_{m_J} = 1$ , 对  $J = 1/2$  原子, 由此偶极极化度  $P$  可唯一确定原子的集居状况, 即所有的  $\rho_{m_J}$  值。对  $J > 1/2$  原子, 除  $P$  以外还需四极、八极等高阶极化度 (共  $2J$  个), 才能给出全部  $\rho_{m_J}$  值<sup>[17]</sup>。我们的浓缩方案只要求原子分别集居于  $m_J \geq 0$  和  $m_J < 0$  态, 故采用正、负  $m_J$  态的集居度  $P_m = \sum_{m \geq 0} \rho_{m_J} - \sum_{m < 0} \rho_{m_J}$  (简称集居度) 代替极化度, 对浓缩原子集居状态作充分而确定的描述。显然, 对  $J = 1/2$  原子和  $J > 1/2$  的  $P = \pm 1$  情形,  $P_m$

与  $P$  等价。  
通常在弱磁场中对<sup>235</sup>U 进行的光抽运的直接结果是导致  $(F, m_F)$  态的非均衡集居。为了在磁铁的强磁场区得到  $P_m$  近于 1 的高集居度, 首先希望通过抽运使原子集居到与  $m_J \geq 0$  对应的  $(F, m_F)$  态 (即图 1 的实线右边的态), 其次要求原子从抽运的弱磁场区进入偏转的强磁场区时, 满足缓变过渡条件, 使从低磁场区的  $(F, m_F)$  态过渡到强磁场区相应的  $(m_J, m_I)$  态, 而在中等磁场区不向相邻态跃迁。在实验装置中使光抽运的弱磁场区与偏转的强磁场区相距较远, 使得在任何地方都不存在很陡的磁场梯度, 则缓变过渡条件成立。

### 3 选择性激光抽运方案

U 原子的基态能级甚多, 为了通过选择性光抽运得到甚高的正、负  $m_J$  态的集居度, 应选取具有以下特征的谱线: 即跃迁几率大, 用不太高的激光功率即可实现饱和抽运; 自发辐射寿命短, 可在给定的作用时间内有较多的抽运循环; 返回基态的分支比大 (最好为 1), 以免泄漏到其它亚稳态而达不到所要求的  $m_J$  态; 同位素频移较大, 使  $^{235}\text{U}$  和  $^{238}\text{U}$  原子能分别用不同的激光束进行选择抽运。通过比较可以选取  $5f^3 6d^{10} 7s^5 L_6^0 - 5f^3 6d^{10} 7s 7p^7 M_7$  跃迁的 591.54 nm 谱线同时抽运 U 的两种同位素。当然, 用其它基态谱线同时抽运或用两条谱线分别抽运两种同位素也是可行的。

采用不同的偏振并具有适当的频率、功率、线宽和光束宽度的激光束分别抽运  $^{235}\text{U}$  和  $^{238}\text{U}$ , 原则上可同时实现  $^{235}\text{U}$  的正  $m_J$  态集居和  $^{238}\text{U}$  的负  $m_J$  态集居。由于  $^{238}\text{U}$  无超精细结构, 在低磁场中 13 个基态子能级的能量相同, 用一束  $\sigma^-$  偏振的共振激光抽运  $^{238}\text{U}$ , 不难使均匀分布 13 个子能级上的原子绝大部分集居到负  $m_J$  态, 得到  $P_n \approx -1$  高集居度。对  $^{235}\text{U}$  (如图 1 所示) 而言, 为了使处于负  $m_J$  态上的原子集居到正  $m_J$  态, 必须用适当的频率的  $\sigma^+$  偏振激光同时在低磁场下抽运  $F = 19/2, 17/2, 15/2, 13/2, 11/$

$2, 9/2$  这六个超精细能级。具体实现方案有二: 一是用多台激光器或用声光调制器移频产生六束不同频率的窄带激光分别抽运上述六个  $F$  能级; 二是采用一束能覆盖这些  $F$  能级的宽带激光同时抽运六个子能级。以 591.54 nm 谱线为例, 其原子束荧光谱如图 3 所示。通常用  $\Delta F = \Delta J$  的强谱线  $19/2-21/2$ 、 $17/2-19/2$ 、 $15/2-17/2$ 、 $13/2-15/2$ 、 $11/2-13/2$  和  $9/2-11/2$  激发, 因而用较低的激光功率就可得到好的抽运效果。如用六束偏振的窄带激光抽运, 它们的频率间距为 (由低到高) 1755、1294、939、680、502 MHz, 这可由声光调制器将三束激光一分为二获得频率间距为 1755、939、502 MHz 的六束激光。 $^{238}\text{U}$  谱线与相距最近的  $^{235}\text{U}$  的  $19/2-21/2$  线频差为 6.2 GHz (此谱线的同位素频移为 8.46 GHz), 垂直激光束激励的原子束吸收谱的线宽一般为几十兆赫兹 (包括激光器带宽), 因此可以保证准确调谐的  $\sigma^+$  激光束只抽运  $^{235}\text{U}$  而  $\sigma^-$  激光束只抽运  $^{238}\text{U}$ 。如用一束  $\sigma^+$  偏振的宽带激光抽运, 则要求带宽略大 5.2 GHz, 并准确调节频率以覆盖上述六条谱线, 使  $^{235}\text{U}$  的六个超精细能级 ( $F = 9/2, 11/2, \dots, 19/2$ ) 都被抽运达到  $m_J \geq 0$  的态集居,  $^{238}\text{U}$  则不受此激光束的作用。显然, 减少窄带激光束的数目或宽带激光束的带宽, 将使  $^{235}\text{U}$  的上述六个基态超精细能级的一部分被抽运, 从而降低了集居度。

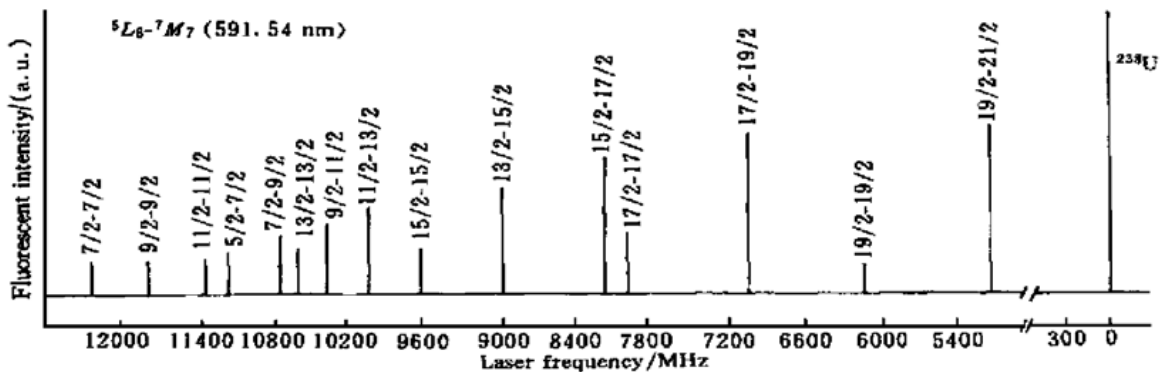


Fig. 3 Fluorescence spectra from a uranium atomic beam as a function of the relative laser frequency for the line of  $\lambda = 591.54$  nm (from [12]). The bottom and top numbers associated with the hfs components denote the values of  $F$  of  $^5L_6^0$  and  $M_7$  respectively

为了使 U 的两种同位素同时获得高的集居度, 除前面已提到的激光偏振和频率条件外, 对激光功率、线宽和束宽也有相应的要求:

1) 激光功率: 单位截面内激光束功率应接近于饱和光强, 以缩短抽运周期。所需激光功率与光束截面有关, 一般几十毫瓦可满足要求<sup>[5]</sup>。

2) 激光线宽: 希望能大于原子束的多普勒剩余线宽 (对适当准直的原子束通常为几十兆赫兹),

使在略有发散的原子束中沿不同方向行进的原子都受到抽运<sup>[5]</sup>。

3) 激光束宽: 通常需经多个 (如几十个以上) 抽运周期, 才能用  $\sigma^+$  ( $\sigma^-$ ) 偏振激光将原子从  $m_J < 0$  ( $m_J > 0$ ) 态集居到  $m_J > 0$  ( $m_J < 0$ ) 态, 因而希望激光在原子束方向上有较大的束宽<sup>[5]</sup>。对热运动的原子束, 沿原子运动方向的激光束宽近于 1 cm 即可。采用柱形透镜, 不难将激光扩展为所要

求的椭圆形光束<sup>[18]</sup>。

### 4 分析与讨论

采用选择性激光抽运方案并使激光参数满足相应要求, 可同时得到<sup>235</sup>U 和<sup>238</sup>U 原子相当高的正、负  $m_J$  态集居, 例如至少可使<sup>235</sup>U 的集居度  $P_{mA}$  接近 0.7 到 0.8, <sup>238</sup>U 的集居度  $P_{mB}$  达 -0.8~ -0.9。

二极和六极选态磁铁的技术已相当成熟, 磁铁对正、负  $m_J$  态原子的选择性  $S_m$  通常甚近于 1<sup>[18,19]</sup>。同位素浓缩效果由分离选择性  $S$  表征, 它定义为浓缩后与浓缩前两同位素丰度之比。  $S = (\beta_A / \beta_B) / (\beta_{A0} / \beta_{B0})$ 。天然铀<sup>235</sup>U 和<sup>238</sup>U 的丰度比为  $7.2 \times 10^{-3}$ ; 核燃料要求<sup>235</sup>U 的丰度比为  $3.1 \times$

$10^{-2}$ , 因此为了使天然铀浓缩成可用的核燃料, 要求  $S \geq 4.3$ 。本浓缩方案的分离选择性  $S$  由  $m_J$  态集居度  $P_{mA}$ 、 $P_{mB}$  及磁铁选择性  $S_m$  决定<sup>[5,7]</sup>, 即  $S = (1 + P_{mA} S_m) / (1 + P_{mB} S_m)$ 。在上述  $P_{mA}$ 、 $P_{mB}$  和  $S$  的可能取值范围内, 算得  $S > 4.3$  (见表 1)。可见, 采用本方案能够获得丰度高于燃料级铀的浓缩铀。考虑到前面未提及的某些因素, 如汽化形成的高温 U 原子不完全布居在基态 (最可能布居是略高于基态的  $620 \text{ cm}^{-1}$  能级<sup>5</sup> $K_5^0$ ) 而不被抽运, 由激发态<sup>7</sup> $M_7$  将有极少数原子自发衰变到基态以外的能级 (例如衰变到  $3800 \text{ cm}^{-1}$  的<sup>5</sup> $L_7^0$ ) 而引起的泄漏, 将使实际得到的集居度会有所降低, 由于表中给出的上限数值远高于燃料级浓缩铀的要求, 因此用本方法实现燃料级铀的浓缩是完全可行的。

Table 1 The calculated values of the separation selectivity

$P_{mA} S_m$	0.9				0.8				0.7			0.6			0.5		
$- P_{mB} S_m$	0.9	0.8	0.7	0.6	0.9	0.8	0.7	0.6	0.9	0.8	0.7	0.9	0.8	0.7	0.9	0.8	0.7
$S$	19.0	9.5	6.3	4.7	18.0	9.0	6.0	4.5	17.0	8.5	5.6	16.0	8.0	5.3	15.0	7.5	5.0

### 参 考 文 献

[1] Tiffany W B. Selective photochemistry of bromine using a ruby laser. *J. Chem. Phys.*, 1968, **48** (7): 3019~ 3031

[2] Tuccio S A, Dubrin J W, Peterson D G *et al.*. Two-step, selective photoionization of <sup>235</sup>U in uranium. *IEEE J. Quant. Electron.*, 1974, QE-**10** (9): 790

[3] Ambartsumian R V, Gorokhov Y A, Letokhov V S *et al.*. Separation of sulfur isotopes with enrichment coefficient  $> 10^3$  through action of CO<sub>2</sub> laser radiation on SF<sub>6</sub> molecules. *JETP Lett.*, 1975, **21** (6): 171~ 176

[4] Bernhardt A F. Isotope separation by laser deflection of an atomic beam. *Appl. Phys.*, 1976, **9** (1): 19~ 34

[5] 朱熙文. 通过极化原子束的磁偏转实现激光同位素浓缩. *物理学报*, 1984, **33** (11): 1605~ 1609;

[6] Zhu Xiwen, Huang Guilong, Mei Ganghua *et al.*. Laser isotope enrichment of lithium by magnetic deflection of a polarized atomic beam. *J. Phys. (B)*, 1992, **25** (15): 3307~ 3314

[7] 黄贵龙, 梅刚华, 朱熙文 等. 半导体激光铷同位素浓缩实验. *科学通报*, 1992, **37** (24): 2232~ 2233;

Mei G H, Zhang Y, Haung G L *et al.*. Diode-laser isotope enrichment of rubidium with a polarized atomic beam. *Appl. Phys. Lett.*, 1993, **63** (26): 3568~ 3570

[8] Mei Ganghua, Zhong Da, Tan Yongfang *et al.*. Isotope enrichment of europium with a polarized atomic beam. *Chin. Sci. Bull.*, 1996, **41** (14): 1160~ 1165

[9] Gerstenkorn S, Luc P, Bauche-Arnoult C *et al.*. Structure hyperfine du nifondamental, moments dipolarite et quadrupolaire del' isotope 235 del' uranium. *J. Phys.*,

1973, **34** (10): 805~ 812

[10] Bohm H-D V, Michaelis W, Weitkamp C. Hyperfine structure and isotope shift measurement on <sup>235</sup>U and laser separation of uranium isotopes by two-step photoionization. *Opt. Commun.*, 1978, **26** (2): 177~ 182

[11] Hackel L A, Bender C F, Johnson M A *et al.*. Hyperfine structure measurements of high-lying levels of uranium. *J. Opt. Soc. Am.*, 1979, **69** (2): 230~ 232

[12] Childs W J, Poulsen O, Goodman L S. High-precision measurement of <sup>235</sup>U ground-state hyperfine structure by laser-rf double resonance. *Opt. Lett.*, 1979, **4** (1): 35~ 37

[13] Ramsey N F. *Molecular Beams*. London: Oxford University Press, 1956

[14] Lemonick A, Pipkin F M. Spins and hyperfine splittings of Ag<sup>111</sup> and Cu<sup>64</sup>. *Phys. Rev.*, 1954, **95** (2): 1356~ 1357

[15] Whughes V, Long R L, Lubell M S *et al.*. Polarized electrons from photoionization of polarized alkali atoms. *Phys. Rev. (A)*, 1972, **5** (1): 195~ 222

[16] 梅刚华, 朱熙文, 黄贵龙. 六极磁铁选态系统性能分析与实验测量. *物理学报*, 1991, **40** (1): 1776~ 1785; 张原, 朱熙文, 梅刚华. Eu 原子束通过选态磁铁时的偏转特性. *物理学报*, 1995, **44** (5): 685~ 692

[17] Happer W. Optical pumping. *Rev. Mod. Phys.*, 1972, **44** (2): 169~ 249

[18] Baum G, Dcaldwell C, Schroder W. Dual-frequency optical pumping for spin-polarizing of lithium atomic beam. *Appl. Phys.*, 1980, **21** (2): 121~ 126

[19] 张原, 朱熙文, 梅刚华. Eu 原子束通过选态磁铁时的偏转特性. *物理学报*, 1995, **44** (5): 685~ 692

## A Scheme of Uranium Isotope Enrichment via Magnetic Deflection of an Atomic Beam Polarized by Laser Pumping

Huang Xueren Zhu Xiwen Mei Ganghua Zhong Da

(*Laboratory of magnetic Resonance and Molecular Physics, Wuhan Institute of Physics and Mathematics, The Chinese Academy of Sciences, Wuhan 430071*)

(Received 5 July 1999; revised 14 January 2000)

**Abstract:** A scheme of magnetic deflection of an atomic beam polarized by laser pumping applied to isotope enrichment of uranium is presented. The characteristics of magnetic deflection for all sub-levels in the ground state of uranium atoms were evaluated. An experimental method of selectively polarized uranium atoms by optical pumping was proposed. The available enrichment result in this scheme was discussed.

**Key words:** optical pumping; isotope enrichment; polarized atomic beam