

原子蒸气激光法分离钆同位素的偏振选择性实验

柴俊杰 李志全

(天津理化工工程研究院, 天津 300180)

摘要 对原子蒸气激光法分离钆同位素中的光电离选择性进行了实验研究。分析了在偏振选择定则基础上分离钆奇数同位素的基本原理;测量了电离路径中总角动量 $J=2 \rightarrow 2 \rightarrow 1 \rightarrow 0$ 变化时的光电离选择性;观察了光的偏振状态改变时光电离选择性的变化,通过控制光阑的大小观测到杂散光引起的光电离选择性降低;进行了外磁场对光电离选择性的影响实验,基本给出了磁场方向和大小对于光电离选择性的影响程度。在外磁场方向垂直于光束的偏振方向时,很微弱的磁场就能引起光电离选择性的降低,磁场大小在 2×10^{-4} T 时就看到了明显的选择性变化。当外磁场的方向平行光束的偏振方向时,磁场对于选择性的影响就显得相对很小。

关键词 材料;钆;原子蒸气激光法分离同位素;选择性;偏振;磁场

中图分类号 O433.2 文献标识码 A doi: 10.3788/AOS20092906.1596

Experiment on Polarization Selectivity in Gd Atomic Vapor Laser Isotope Separation

Chai Junjie Li Zhiquan

(Research Institute of Physical and Chemical Engineering, Tianjin 300180, China)

Abstract Experiments on photoionization process of Gd by the atomic vapor laser isotope separation (AVLIS) method were carried out. The theoretic principle of selective photoionization of odd Gd isotope based on the polarization selection rules was also presented. Experiments validate the isotope selectivity with $J=2 \rightarrow 2 \rightarrow 1 \rightarrow 0$ multistep photoionization of Gd. The effect of the magnetic field and the laser polarization state on the isotope selectivity was studied by the experiment and numerical analysis. When the angle of axes between laser polarization and magnetic field is 90° , the selectivity may be lost easily by an external magnetic field. The selectivity decreases obviously as the magnetic field exceeds 2×10^{-4} T. On the other hand, the selectivity changes much more slowly when the angle of axes between laser polarization and magnetic field is 0° .

Key words materials; gadolinium; atomic vapor laser isotope separation; selectivity; polarization; magnetic field

1 引言

天然钆有 7 种同位素,包括 ^{152}Gd (0.20%), ^{154}Gd (2.18%), ^{155}Gd (14.80%), ^{156}Gd (20.47%), ^{157}Gd (15.65%), ^{158}Gd (24.84%), ^{160}Gd (21.86%)。其中 ^{155}Gd 和 ^{157}Gd 具有非常大的热中子吸收截面(特别是 ^{157}Gd 。其热中子吸收截面为 255000 b),因此天然钆在核反应堆中以 Gd_2O_3 的形式被用作可燃毒物。如果在天然钆的基础上浓缩 ^{157}Gd 可以实现的话,核反应堆的很多问题都可以解决,从而可以实现

燃料的减少、更高的燃烧深度、经济性的提高等。

由于钆同位素没有稳定的气体化合物,并且存在多种天然同位素,所以很难使用离心和扩散法对钆同位素进行工业规模的分离。原子蒸气激光法分离同位素(AVLIS)技术在钆同位素分离方面应该是最有前途的。

AVLIS 主要基于同位素位移,而钆的同位素位移较小,奇同位素因核自旋不为零而存在超精细结构,普通方法很难实现选择性较高的光电离。可以选择

收稿日期: 2008-06-10; 收到修改稿日期: 2008-11-07

作者简介: 柴俊杰(1982—),男,助理工程师,主要从事激光原子共振光谱、激光同位素分离方面的研究。

E-mail: chai-jj@163.com

几束激发光均为偏振方向一致的线偏振光^[1](称为平行线偏振光)来实现对奇偶同位素的选择性分离。

关于利用偏振选择定则来实现钷的同位素分离的实验研究,法国^[2]、美国^[3]和日本^[4,5]等的研究机构在这方面都作了一定工作,包括相关的光谱测量实验,以及针对于磁场的影响实验。

实验验证了基于偏振选择定则的分离方法,同时进行了相关的实验研究。要保证分离的选择性,除了激光的偏振状态需要符合选择原理之外,磁场也会对偏振选择有一定影响,很容易造成光电离选择性的损失。这是影响选择性的两个主要因素,实验主要针对这两个因素进行研究。

2 理论基础

实验中使用的钷的能级和激发、电离光如图 1 所示^[3]。

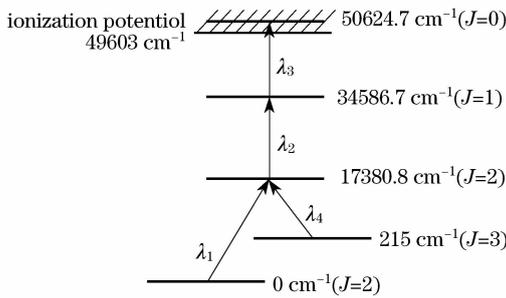


图 1 实验中使用的钷的电离路线

Fig.1 Excitation pathway used in the experiment for Gd isotope photoionization

平行线偏振光激发、电离原子的选择定则为

- a. $\Delta J = 0, \pm 1$
- b. $\Delta m = 0$ (但 $\Delta J = 0, m = 0 \rightarrow 0$ 禁戒)

其中, J 为轨道量子数 L 和自旋量子数 S 耦合后的总量子数, m 为磁量子数。

当 λ_1, λ_2 和 λ_3 同时作用并保持平行线偏振时,电离路线为 $J = 2 \rightarrow 2 \rightarrow 1 \rightarrow 0$,此时偶同位素和奇同位素在平行线偏振光作用下的可能跃迁分别如图 2 所示^[1]。

当 λ_4, λ_2 和 λ_3 同时作用并保持平行线偏振时,电离路线为 $J = 3 \rightarrow 2 \rightarrow 1 \rightarrow 0$,此时偶同位素在平行线偏振光作用下的可能跃迁如图 3 所示。

蒸发产生的钷原子蒸气存在能态热布居,主要分布在基态和 4 个亚稳态(215, 532, 999 和 1719 cm^{-1} , J 量子数分别为 3, 4, 5, 6)上。由分析可知,要保持奇偶同位素的选择性,当选定电离路线为 $J = 2 \rightarrow 2 \rightarrow 1 \rightarrow 0$ 时,就不可能同时利用亚稳态上

的原子。

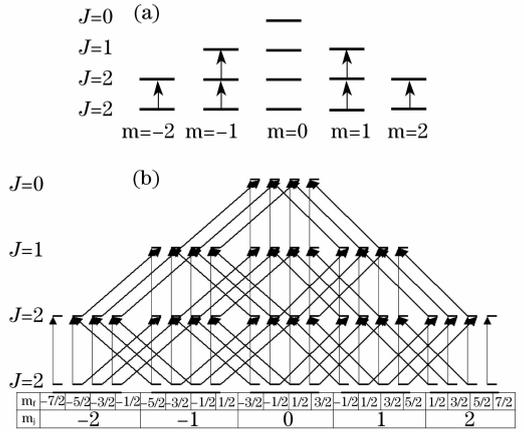


图 2 平行线偏振光作用下偶同位素(a)和奇同位素(b)的可能跃迁

Fig.2 Possible transition of even isotope (a) and odd isotope (b)

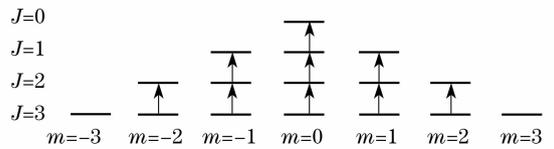


图 3 平行线偏振光作用下偶同位素的可能跃迁
Fig.3 Possible transition of even isotope with parallel linearly polarized lasers

外界磁场下,原子的 Hanle 效应会使得原子“偏振状态”发生偏转,在电离路线为 $J = 2 \rightarrow 2 \rightarrow 1 \rightarrow 0$ 时,平行线偏振光作用下偶同位素也会存在被电离的部分,奇偶同位素的选择性不再存在。

3 实验原理及装置

实验的总体示意图如图 4 所示。采用脉冲染料激光系统,利用固体激光器抽运染料来得到脉冲激光,并多级放大。激光线宽为 4~5 GHz,脉冲脉宽为 30 ns,脉冲频率为 10 kHz。其中, λ_1 与 λ_4 使用同一套染料激光器,通过调谐染料波长实现不同的电离通道。

激光器输出的光有一定的偏振性,为竖直方向偏振分量较大的椭圆偏振光,在三束光合成后加一个偏振棱镜 PP_1 使三束光均保持竖直线偏振,在合成后的光路中增加聚束透镜组、光阑和偏振棱镜 PP_2 ,偏振棱镜的消光比约 100 : 1。

坩埚通过电阻加热的形式来获得实验需要的原子束,原子束通过准直孔后在质谱探头的离子源处与激光束作用,产生光离子,通过质谱探头测量并分

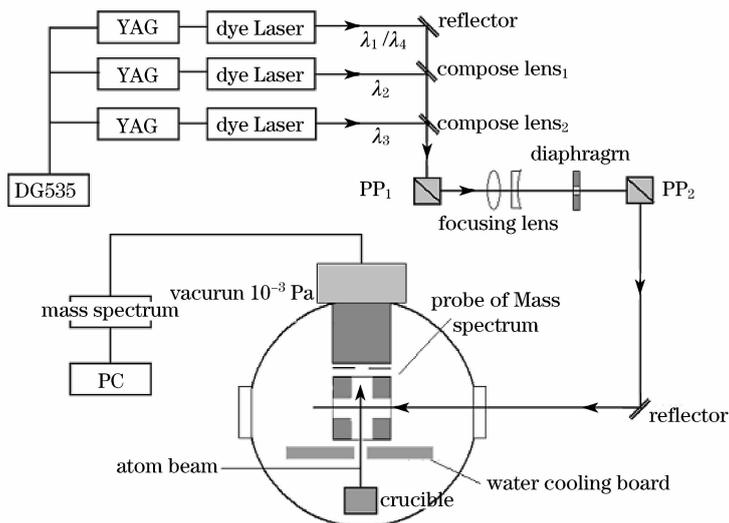


图 4 实验总体示意图

Fig.4 Schematic of experimental apparatus

析离子。实验使用的是四极质谱仪,基本工作原理是通过四极杆来实现质量选择,它的分辨率和灵敏度均可以通过调节内部电参数来实现。

为了在光与原子作用区域内排除磁场的影响,在水冷板上放置一层碳钢板,并把质谱探头部分用碳钢罩子包围起来。分析在实验装置内的磁场来源,首先是蒸发装置的加热电流产生的磁场,在光作用区域高度的磁场大小约在 10×10^{-4} T 量级,加上一层碳钢板之后基本能屏蔽该磁场;其次为地磁场以及其它本底磁场,地磁场大小约为 5×10^{-5} T 左右,用碳钢罩子包围质谱探头基本上能屏蔽地磁场等本底磁场的影响。

为了研究磁场对于光电离选择性的影响,需要在离子源处设计一个可控的磁场,实验选择线圈组来实现。两个线圈串联,通过调节线圈电流来实现光与原子作用区域中磁场的大小变化,如图 5 所示。

本可以消除此影响),以及在光与原子作用区域的杂散光的影响。

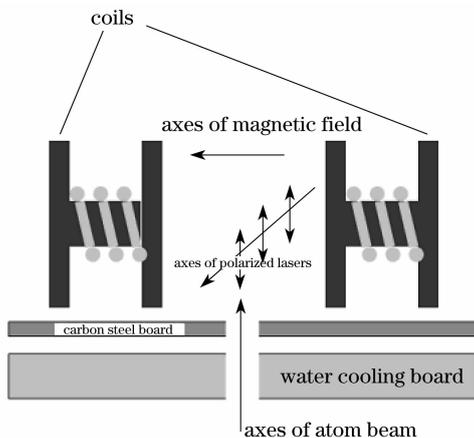


图 5 线圈组示意图

Fig.5 Schematic of coils

4 实验结果与分析

λ₁, λ₂ 和 λ₃ 同时作用并保持平行线偏振,这时可以看到质谱信号表现出较好的光电离选择性,两个奇同位素 ¹⁵⁷Gd 和 ¹⁵⁵Gd 的电离信号远大于其它偶同位素的信号,如图 6 所示。

λ₄, λ₂ 和 λ₃ 同时作用并保持平行线偏振,这时可以看到质谱信号并没有很好的光电离选择性, ¹⁵⁷Gd 附近几个同位素的电离信号均较大,如图 7 所示。

光束影响选择性的主要原因为三束光的偏振一致性发生变化,在实验的光路中主要包括光路中光学元件对偏振的影响(光路最后的偏振棱镜 PP₂ 基

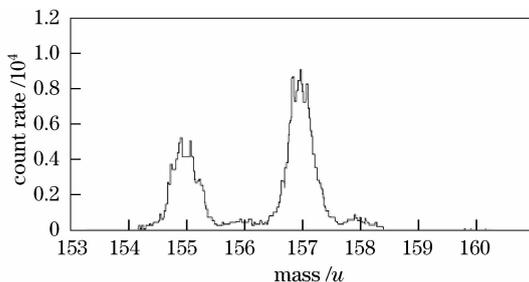


图 6 λ₁, λ₂ 和 λ₃ 同时作用并保持平行线偏振时的质谱图

Fig.6 Mass spectra of Gd ions with polarized lasers λ₁, λ₂ and λ₃

实验中光是通过小孔入射到光与原子作用区域,光束有可能打到小孔边缘产生反射,使得光束的偏振状态不一致,并影响到电离选择性。光束直径

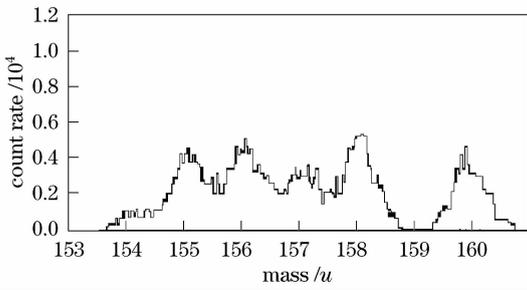


图 7 λ_1, λ_2 和 λ_3 同时作用并保持平行线偏振时的质谱图

Fig.7 Mass spectra of Gd ions with polarized lasers λ_1, λ_2 and λ_3

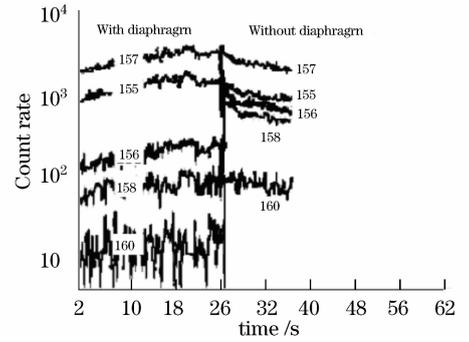


图 8 光阑对选择性影响实验的多通道质谱信号

Fig.8 Mass spectra of Gd ions with and without diaphragm

的改变会直接影响到产生反射的程度,反射引起的杂散光一定程度上影响光束偏振一致性进而影响了电离选择性。实验观测不同光阑大小时的质谱信号,可以明显看到光阑的大小在一定程度上影响电离信号的选择性。图 8 是加上直径为 2 mm 的光阑前后的质谱多通道信号的变化,可以明显看出光阑对光电离选择性的影响。

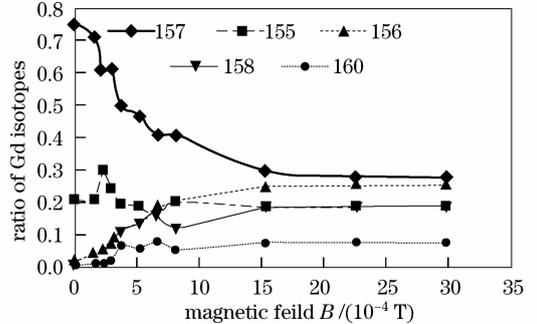


图 9 不同磁场大小下各同位素质谱信号的百分比

Fig.9 Mass spectra ratio of Gd isotopes in the different magnetic field

磁场影响实验如图 5 所示,光束为竖直线偏振光,而磁场方向、光束和原子束两两垂直,此时磁场方向垂直于光束的偏振方向。在保持其它条件不变的基础上,改变线圈电流的大小,并观测质谱信号的变化,图 9 给出了各同位素质谱信号占总质谱信号的百分比随磁场大小的变化。

性越来越差。图 10 给出了随着磁场的增大质谱信号的单通道信号图的变化趋势。

从图 9 中可以看出,随着磁场的增大,电离选择

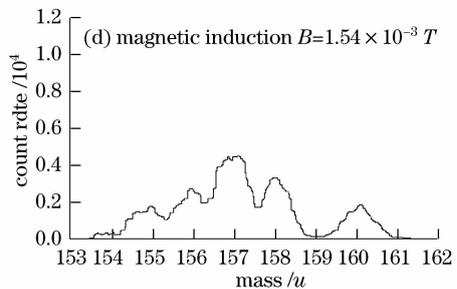
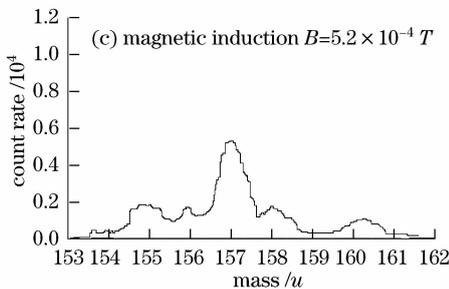
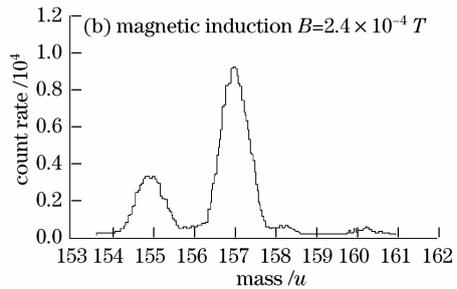
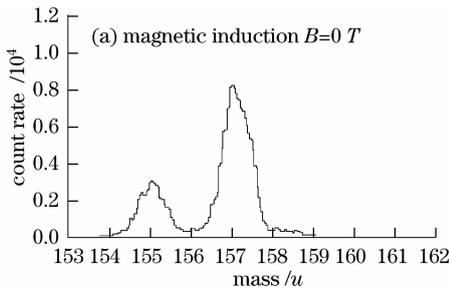


图 10 磁场方向垂直偏振方向时不同磁场大小下质谱单通道信号的变化

Fig.10 Mass spectra of Gd ions in the different magnetic fields when the angle of axes between laser polarization and magnetic field is 90°

在光路的偏振棱镜 PP_1 与聚束透镜组之间添加宽带 $\lambda/4$ 云母波片,并且使波片的光轴方向大致与水平方向成 45° ,使得原来的竖直线偏振光变成圆偏振光。然后选取偏振棱镜 PP_2 的透射光(水平

偏振)来作用原子束,此时作用光束的偏振方向与磁场方向大致平行。在不同磁场大小下观测质谱信号。图 11 给出了随着磁场的增加,质谱的单通道信号图的变化。

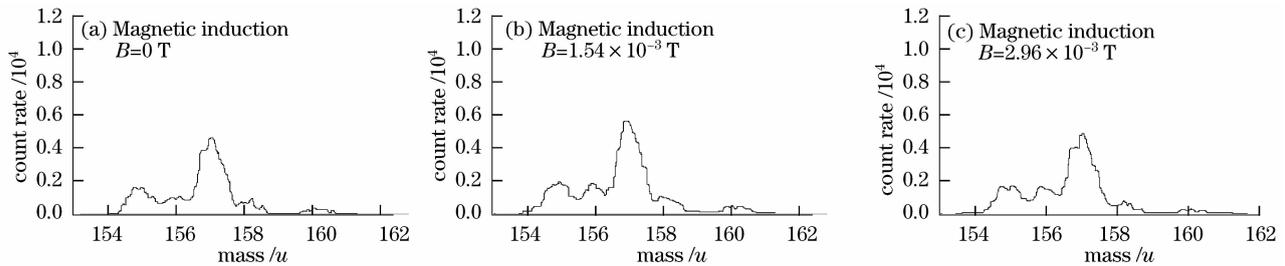


图 11 磁场方向平行偏振方向时不同磁场大小下质谱单通道信号的变化

Fig. 11 Mass spectra of Gd ions in the different magnetic fields when the angle of axes between laser polarization and magnetic field is 0°

从图 11 可以看出,当光束的偏振方向与磁场方向平行时磁场对光电离选择性的影响远小于光束偏振方向垂直于磁场方向时的情况。

得到的关于磁场大小和方向对于偏振选择性的影响结果与文献[5]中的实验数据基本一致。

此一并表示感谢。

6 结 论

验证了在偏振选择基础上分离钷奇数同位素的基本原理,得到了一定的光电离选择性。实验中得到的光电离选择性并不是很高,测到的数值受到热离子(蒸发过程有一定的热离子产生,而热离子本身不具有选择性)、当前光路以及质谱分辨率等影响,这些因素使得实验测量得到的光电离选择性一定程度上偏低。

观察了光的偏振状态改变时选择性的变化,通过控制光阑的大小观测到杂散光引起的选择性降低。

进行了磁场对光电离选择性的影响实验,在磁场方向垂直与光束的偏振方向时很微弱的磁场就能引起选择性的损失,磁场大小在 2×10^{-4} T 时就能看到明显的选择性变化。当磁场的方向平行光束的偏振方向时,磁场对于选择性的影响就显得相对很小。

致谢 吴映菊、刘海勇等同事一起参与实验,张晓卫、邱成、陈日升等在实验过程中给予热心指导,在

参 考 文 献

- 1 L. C. Balling, J. J. Wright. Use of angular-momentum selection rules for laser isotope separation[J]. *Appl. Phys. Lett.*, 1976, **29**(7): 411
- 2 E. Le Guyadec, J. Ravoire, R. Botter *et al.*. Effect of a magnetic field on the resonant multistep selective photoionization of gadolinium isotope[J]. *Opt. Commun.*, 1990, **76**: 34~41
- 3 Chris Haynam, Brian Comaskey, John Conway *et al.*. Status of gadolinium enrichment technology at LLNL [C]. *SPIE*, 1993, **1859**: 23~34
- 4 H. Niki, N. Aly, K Koh *et al.*. Laser isotope separation of gadolinium [C]. *Proceedings of the 6th international symposium on advanced nuclear energy research*, 1994, 970~979
- 5 Shigeki Tokita, Yasukazu Izawa, Hideaki Nili *et al.*. Selectivity loss due to magnetic field in laser isotope separation of gadolinium based on polarization selection rules[J]. *Journal of Nuclear Science and Technology*, 2003, **40**(12): 1014~1018
- 6 Wang Dewu. *Theory and Application of Laser Isotope Separation* [M]. Beijing: Atomic Energy Press, 1999.
王德武. 激光分离同位素理论及其应用[M]. 北京: 原子能出版社, 1999.
- 7 Du Yingjie, Ge Guoku. The atomic absorption in N-Type four-level system[J]. *Acta Optica Sinica*, 2008, **28**(2): 375~380
杜英杰, 葛国库. N型四能级系统的原子吸收[J]. *光学学报*, 2008, **28**(2): 375~380
- 8 Wang Li, Song Haizhen, Xiao Shaowu. Influence of laser-field linewidth on atomic coherence effect in four-level atomic system [J]. *Acta Optica Sinica*, 2008, **28**(1): 194~199
王 丽, 宋海珍, 肖绍武. 激光场线宽对四能级原子系统相干效应的影响[J]. *光学学报*, 2008, **28**(1): 194~199