

激光分离同位素 理论及其应用

王德武 著

谨以此书

献给中华人民共和国建国五十周年

核科学技术丛书

编辑工作委员会

主任:孙家辉

副主任:张铎清

委员:(以姓氏笔画为序)

乐俊楚	孙家辉	李 镁	李盈安
张本东	张铎清	赵守林	姜 樾

编辑工作小组

组长:张铎清(兼)

副组长:李 镁

成员:张铎清 李 镁 赵志军

序

核科学技术,是一门新兴的尖端科学技术,包括核物理、核化学等基础学科以及为实现核裂变和核聚变直接相关的核资源勘查、核原料开采与加工、同位素分离、核燃料元件制造、核反应堆、乏燃料后处理、加速器、核动力和同位素与辐射技术等应用核技术。

自从 1896 年发现天然放射性,1934 年发现人工放射性和 1938 年发现核裂变以来,核科学技术发展速度惊人,成果辉煌:1942 年建成第一座核裂变反应堆,紧接着,于 1945 年美国爆炸了第一颗原子弹,1952 年氢弹试验成功,1954 年苏联建成了世界上第一座核电站,1959 年美苏核动力船只先后下水……目前全世界有 400 多座核电机组正在运行,其发电量占世界总发电量 17%;非动力核技术也为人类健康、经济发展和社会进步做出巨大的贡献。

我国核科学技术,自 1955 年以来,经过近 40 年的努力,发展迅速,成绩卓著,蜚声中外。1964 年 10 月 16 日,我国第一颗原子弹爆炸成功,1967 年 6 月 17 日氢弹试验成功,紧接着,我国第一艘核潜艇下水,我国自行设计建造的秦山核电厂并网发电,广东大亚湾核电站建成发电,投入商业运行,受控核聚变研究取得可喜成果,同位素与辐射技术广泛应用于科学研究、医学诊断与治疗 and 工农业生产。

我国核科技事业的发展,推动和促进了整个科学技术和国民经济的发展,大大增强了我国综合国力,提高了我国的国际地位。

我国广大核科技工作者,尤其是老科学家、老专家,为我国核

科学技术和核工业,做出了突出贡献。在中国核工业总公司领导和支持下,原子能出版社在经费十分拮据的情况下,千方百计筹措资金,组织出版这套《核科学技术丛书》,总结他们毕生从事核科技事业所做出的贡献、经验和智慧,大力宣传推广核科学技术,纠正人们头脑中核科学技术只与核武器相联系的不正确想法,消除公众对核科技不必要的疑虑,使核科学技术在我国核工业第二次创业中发挥出巨大的力量,这是难能可贵的了不起之举。我衷心祝贺《核科学技术丛书》的出版。

王淦昌

1994年9月19日

前 言

激光分离同位素是自激光器问世之后兴起的一门新技术。随着激光器件的迅速发展,激光分离同位素的方法也得到了发展。关于激光分离同位素的研究文章发表很多,但至今还未有过一本较全面阐述激光分离同位素的理论著作。

激光分离同位素的不同方法之间在理论上差异甚远。因此,本书在写作上只能取其共同点,兼顾各方,重点阐述。第1,2章作为激光法的共同基础;第3章至第7章为重点阐述内容,即原子激光法分离同位素;第8章则分别介绍了另外两种常用的激光分离方法。

激光分离同位素技术是一门多学科综合性技术。因此,本书只能按激光分离同位素过程的各个环节分别进行理论描述。其中具体阐述了激光分离同位素理论的基本内容,分析了各个过程的物理特性。有的章节还用实验研究结果对理论分析进行了验证。

70年代末,我们开始了激光应用的教学和研究工作,激光分离同位素则是其中重要内容。先后为研究生和高年级本科生开设了“激光应用”、“激光法分离同位素原理”、“激光光谱与微弱信号探测”以及“ SF_6 红外多光子离解分离硫同位素”等课程。这为本书的写作打下了基础。

早期关于激光分离同位素的理论和实验研究工作是分子光谱和分子法激光分离同位素,其研究成果反映在第8章中。1985年后,我们又开展了原子光谱和原子法激光分离同位素的研究工作。第4章至第7章反映了后十几年来,我们在原子激光法分离同位素方面所取得的一些研究成果。这些研究成果曾在国内外学术会议上和各种学术期刊上陆续发表。十多年来,先后有一批博士研

究生(梅林、王永刚、孔羽飞、严敏、谢世亮)、硕士研究生和本科生(程晓峰、郭志雄、迟万里、张燕龙、朱一明、肖踞雄、熊家贵、王力鸣、张远铭等)参加了其中部分研究工作,并作出了积极贡献,在此一并致谢。

在教学工作和早期分子法分离同位素研究中,与肖承德教授、包成玉副教授、杨宝燕工程师进行了很好的合作。在博士生培养和原子法激光分离同位素研究方面,与博士生导师应纯同教授、诸旭辉研究员进行了很好的合作。在工作中都得到了他们的帮助,在此一并致谢。

本书所涉及的学科面较宽,既阐述了各个过程的理论,又讨论了各物理过程的特性,有的还给出了几种理论描述方法,有的对某些发展方向作了探讨。

本书初稿承张志忠研究员仔细审校,并提出了宝贵意见。谭俊同志在定稿过程中做了大量工作,在此一并致谢。

本书涉及专业面广,书中难免有缺点和错误之处,望读者指正。

作者

1999年4月于清华园

目 录

第一章 概述	(1)
一、激光分离同位素的发展概况	(1)
二、激光分离同位素方法	(2)
三、激光分离同位素的必要条件	(4)
四、几种常用的激光器	(5)
五、原子蒸气激光法分离系统	(15)
(一) 分离器系统	(15)
(二) 激光器系统	(18)
六、原子蒸气激光法(AVLIS)展望	(20)
参考文献	(22)
第二章 原子与分子光谱	(24)
一、原子的能级结构	(24)
二、电子的自旋与谱线的精细结构	(27)
三、电子组态与光谱项	(30)
四、外场中的原子能级分裂	(33)
(一) 磁场的塞曼效应	(35)
(二) 电场的斯塔克效应	(42)
五、原子核性质与谱线的超精细结构	(43)
六、原子的里德伯态与自电离态	(51)
七、分子能级结构	(54)
八、分子的振转光谱	(61)
九、 SF_6 和 UF_6 的分子结构与光谱	(66)
参考文献	(69)
第三章 原子法激光分离同位素理论基础	(71)

一、同位素位移	(71)
二、激光选择性激发	(74)
(一) 原子的激发过程	(74)
(二) 选择性系数	(76)
(三) 选择性损失	(79)
三、光电离路线的选择	(81)
(一) 光电离步数的选择	(81)
(二) 蒸气原子的有效利用	(82)
(三) 光电离态的选择	(84)
四、分离系数	(86)
五、三步光电离的动力学	(87)
(一) 激发与电离速率	(88)
(二) 激光穿透深度	(91)
(三) 能量转移速率	(92)
(四) 三步光电离动力学方程	(92)
六、提取百分数	(97)
七、激光分离单元的物料关系	(101)
(一) 分离单元的物料平衡关系	(101)
(二) 考虑过流量时的物料关系	(104)
八、激光参数的选择	(109)
九、原子法激光分离同位素的经济性分析	(112)
(一) 价值函数与分离功率表达式	(112)
(二) 激光分离的成本分析	(115)
参考文献	(119)
第四章 激光与原子相互作用	(121)
一、激光与原子相互作用的物理模型	(121)
二、三步光电离的布居动力学方程	(125)
三、四光子三步光电离的布居动力学	(129)

(一) 布居动力学方程的旋转波近似解	(130)
(二) 原子各能级的布居特性	(135)
四、激光脉冲形状效应	(139)
(一) 理论分析	(141)
(二) 脉冲形状效应分析	(146)
五、激光脉冲间时间不同步效应	(149)
(一) 脉冲间时间不同步效应的理论分析	(150)
(二) 脉冲间时间不同步效应分析	(152)
六、密度矩阵方程	(155)
(一) 四能级系统的哈密顿量	(157)
(二) 密度矩阵元的物理意义	(158)
(三) 密度矩阵的运动方程	(161)
(四) 光学布洛赫方程	(164)
七、激光有一定带宽的光电离效应	(167)
(一) 密度矩阵方程的平均化	(168)
(二) 激光有一定带宽的布居特性	(170)
八、激光在厚介质中的传输与光电离	(175)
(一) 在厚介质中的场方程	(176)
(二) 在厚介质中的密度矩阵方程	(178)
(三) 激光在厚介质中传输与光电离特性	(185)
参考文献	(192)
第五章 激光等离子体离子引出收集	(194)
一、等离子体特性	(194)
二、离子引出的物理过程与数学模型	(200)
(一) 离子引出的物理过程	(200)
(二) 离子引出的数学模型	(201)
(三) 方程的归一化	(207)
三、等离子体屏蔽	(211)

(一) 等离子体屏蔽层判断条件	(211)
(二) 等离子体屏蔽带来的问题	(213)
四、粒子碰撞	(218)
(一) 碰撞共振电荷转移	(218)
(二) 电子、离子碰撞复合	(220)
(三) 二次电离	(221)
(四) 碰撞截面	(222)
五、考虑碰撞二维离子引出方程的建立	(227)
六、二维离子引出过程的物理特性	(233)
七、影响离子引出率的因素	(238)
八、提高离子引出率的途径	(243)
参考文献	(246)
第六章 金属高温蒸发	(248)
一、铯金属特性与蒸发方式的选择	(248)
二、大功率 E 型线性电子枪	(249)
(一) 阴极电子发射	(249)
(二) 电子在电磁场中运动的约束方程	(250)
(三) 空间电荷引起的特性	(252)
(四) 皮尔斯(Pierce)枪基本原理及电子枪特性分析	(258)
三、轴对称电子枪	(263)
(一) 轴对称静电场中电子运动的约束方程	(263)
(二) 轴对称枪的理论分析	(265)
(三) 轴对称枪的束流特性	(272)
四、束流传输系统	(275)
(一) 四极磁透镜中粒子的运动方程	(275)
(二) 偏转磁铁的作用矩阵	(285)
(三) 束流的传输特性	(292)
五、高能电子束与金属靶作用的物理特性	(293)

六、熔池自由表面形状分析	(298)
七、熔池流场与温度场的数学模型	(302)
八、坩埚熔池中流场与温度场的分布特性	(310)
九、坩埚熔池具有液-固界面的传热特性	(318)
(一) 动量、能量方程与边界条件分析	(318)
(二) 含有液-固界面熔池的传热特性	(320)
(三) 影响熔池传热特性和蒸发量的因素	(321)
十、自由表面为曲面时熔池的流场与温度场特性	(328)
(一) 方程与边界条件的转换	(328)
(二) 液面凹陷时流场与温度场特性	(333)
参考文献	(336)
第七章 金属真空蒸发动力学	(338)
一、概述	(338)
二、真空柱面蒸发的数学模型	(340)
(一) 物理模型分析	(340)
(二) 柱面蒸发动力学方程推导	(341)
(三) 柱面蒸发的边界条件	(347)
三、点源球面蒸发的动力学问题	(366)
(一) 一维球面蒸发的动力学方程	(366)
(二) 球面蒸发的边界条件	(367)
(三) 一维球面蒸发的物理特性	(370)
(四) 考虑高能电子与蒸气原子间能量交换的 蒸发动力学问题	(373)
(五) 点源蒸发理论分析的实验验证	(378)
四、二维平面蒸发的动力学问题	(382)
(一) 概述	(382)
(二) 二维平面蒸发的动力学方程	(384)
(三) 平面蒸发的边界条件	(387)

(四) 二维平面蒸发的物理特性	(391)
五、蒸发动力学过程的蒙特卡罗法模拟	(401)
(一) 蒙特卡罗法的基本思想及其特点	(401)
(二) 蒙特卡罗法研究蒸发问题的理论基础	(403)
(三) 蒙特卡罗法模拟的条件与步骤	(409)
(四) 蒙特卡罗法模拟二维平面蒸发	(411)
(五) 蒙特卡罗法模拟二维平面蒸发的特性分析	(416)
六、蒸气原子二维空间分布特性的实验验证	(419)
(一) 蒸气原子横向速度分布的测量	(419)
(二) 原子束二维空间径向速度分布的测量	(422)
(三) 二维原子束密度通量分布的测量	(424)
参考文献	(427)
第八章 分子法与激光化学法分离同位素	(429)
一、多光子离解	(429)
(一) 红外多光子离解	(429)
(二) 离解过程的共振特性	(434)
(三) 离解过程的碰撞作用	(435)
二、分子同位素效应	(438)
三、选择性多光子激发	(439)
四、红外多光子离解过程的理论分析	(442)
五、同位素分子浓缩过程的动力学	(446)
(一) 浓缩度	(446)
(二) 分离系数	(449)
(三) 分子速率方程	(449)
六、 UF_6 分子多光子离解分离铀同位素	(452)
七、激光选择性活化光化学反应	(456)
(一) 激光光化学反应	(456)
(二) 选择性光化学条件	(457)

(三) 激光光化学的反应类型	(459)
八、光化学反应动力学过程	(460)
九、激光活化光化学法浓缩铀同位素	(463)
参考文献	(469)
附录	(471)
附录一 常用物理量与变换关系	(471)
附录二 金属铀的物理常数	(471)
附录三 常用函数与积分	(472)

第一章 概 述

一、激光分离同位素的发展概况

人们从实验研究中早已认识到,当原子或分子吸收光子后会
引起物质化学反应的变化,并把这一现象称之为光化学过程。在
元素同位素的光谱研究中发现了原子或分子的同位素效应之后,
人们就设想用选择性光激发原子或分子发生的光化学过程作为一
种分离同位素的方法。

早期的光源为火花源,光源的谱线很宽。人们试图用这种普
通光源进行同位素分离。曾有人将普通光源发出的光通过主要含
有 $^{35}\text{Cl}_2$ 分子的容器进行滤波,然后再将光引入 Cl_2 气体容池,使
 $^{37}\text{Cl}_2$ 分子被选择性激发进行光化学反应,来分离氯同位素。自
1922年H. Hartley等人进行光化学同位素分离的首次实验之后,
人们不断地进行光化学分离同位素的研究。Kuhn, Martin等人用
铝火花源发射的波长为261.82 nm强辐射紫外光,照射光气分子
 $\text{CO}^{35}\text{Cl}_2$ 进行同位素分离。也有人用汞灯的汞-202发射的253.7
nm光选择性激发汞同位素,使受激的汞原子与氧气发生光化学
反应来分离汞同位素。由于受光源的限制,这个阶段光化学分离
同位素的研究工作进展缓慢。

1960年第一台红宝石激光器问世之后,人们获得了单色性好
的强辐射激光光源。这时已不是靠普通火花源自发辐射的非相干
光与原子或分子吸收谱线的啮合来进行光激发,而是用时间和空
间相干性好、线宽窄、功率高的激光进行光激发。特别是染料激光
器出现后,可以实现激光选频,使选择性激发许多元素的原子或分

子成为可能。这时光化学分离形成一个新的研究领域。1966年 W.B. Tiffang 等人首次用激光进行了光化学同位素分离的实验研究。红外波段激光的出现实现了分子振动能级的激发,1970年之后,曾有人用振动光化学法完成激光光化学分离。

随着激光技术的发展,不断出现新的激光器,使激光法的实用范围逐渐扩大。有人用高功率 CO_2 激光选择性激发 BCl_3 分子,以多光子离解为基础的选择性光物理法分离 B 同位素获得成功。70年代初美国的洛斯·阿拉莫斯实验室用高功率 CO_2 激光实行多光子离解 SF_6 ,进行分离硫同位素的研究,进而开展了用 $16\text{ }\mu\text{m}$ 激光选择性离解 UF_6 以实现分离铀同位素的研究。1976年,法国相继也开展了激光选择性激发 UF_6 分离铀同位素的研究。1975年美国的劳伦斯·利弗莫尔实验室用双频激光光电离技术,成功地进行了铀-235的分离,并获得了毫克量级丰度为 3 % 的铀-235。

80年代初期,采用 UF_6 为工作介质的红外多光子离解分离铀同位素,和以铀金属蒸气为工作介质的三步光电离分离铀同位素都已形成较完整的实验体系,有的已初具规模。1985年美国国家能源部决定对上述两种方法进行技术论证,最后,于 1985年6月5日正式宣布原子激光光电离法为美国第三代铀同位素分离方法,并投资进一步开展研究工作,以取代扩散法。美国这一决定,在国际上引起不小反响。于是,世界上许多国家相继开展了激光分离同位素的技术研究。

二、激光分离同位素方法

激光分离同位素以分离介质的物理状态来分,有原子法和分子法;以分离过程的反应性质来分,有激光物理法和激光化学法两种方法。下面分别介绍几种常用的激光分离同位素方法。

1. 激光化学法

气体分子在激光辐照下,因受激发,其活化能减小,在化学反应中反应速度加快。根据此原理,在具有不同同位素的分子系统中,用激光选择性激发某一种同位素分子 A,使其反应速度加快。这样在反应产物中,形成的同位素组成就不同,以此达到富集某一种同位素的目的。这种方法在反应过程中要依靠分子之间的碰撞来进行。为达到高的选择性,必须找到一种受体 R,使其与受激分子 A* 的反应速度明显高于其他过程。激光化学法的分离过程: (分子 A 光激发)→(分子 A* 与受体 R 反应)→(反应物的化学分离)。

2. 分子激光法 (MLIS)

该法全称为分子激光同位素分离 (Molecule Laser Isotope Separation), 又简称分子法。这是一种单分子光化学反应过程。分子的吸收谱带比较宽,具有分立能级和准连续能级交叉的分子,吸收一个光子不能获得好的选择性。所以,一般是利用分立能级吸收谱线的窄宽度,吸收几个光子获得一定的选择性,再进一步吸收多个光子达到分子离解,这称为无碰撞多光子离解。被离解的分子形成新的产物,经化学处理后使不同的同位素分子分离开。这种方法是多原子分子进行同位素分离的理想方法。为保持初始的选择性,被选择激发的分子受激速率必须高于激发转移和热激发速率。分子激光法离解过程: (分子 A 光激发)→(分子 A* 的光离解)→(使离解产物稳定和分离)。

3. 原子蒸气激光法 (AVLIS)

该法全称为原子蒸气激光同位素分离 (Atomic Vapor Laser Isotope Separation), 又简称原子法。这是一种光物理方法。原子经激光选择性激发后,处于某个激发态,其电离能减小。当受激原子再受第二种频率的激光照射后,受激原子发生电离(即二步光电离)。而未受激的其他同位素原子仍保持中性。这样在电场或磁