

原子法激光分离同位素中的光物理过程

林福成 曾和平

(中国科学院上海光学精密机械研究所, 上海 201800)

介绍了原子法激光分离铀同位素的历史和现状, 讨论了高激发态铀原子能级的参数(同位素移动、超精细结构、跃迁截面等)的测量和理论, 强激光场中自电离态的行为, 考虑了激光相干性之后的相互作用以及原子与多模激光相互作用的统计学问题等。

激光分离同位素是近 20 年发展起来并逐步完善的先进技术, 一个主要应用是铀浓缩工程。较之于过去常用的分离同位素方法(如离心法、扩散法), 它具有很强的经济竞争力, 并且所需工程规模较小。人们期望借此投产新一代高效低耗地生产核燃料的浓缩工厂。本文将重点介绍原子法激光法分离铀同位素中的基本光物理过程。

一、历史回顾

含有不同的同位素的原子或分子的能级结构有十分微小的差异, 因而相应的吸收光谱存在差异, 即同位素位移。基于此, 利用激光的优异单色性, 可以对不同的同位素进行选择激发, 然后再用物理或化学的方法将它们分离开来, 达到分离、浓缩的目的。

早在 20 年代初, 人们就提出了利用化学反应的选择性光受激来分离同位素的设想。到了 1932 年, 库恩(K. Kuhn)和马丁(H. Martin)就经 COCl_2 的光解成功地分离了氯同位素。利用选择性光化学作为一种铀同位素分离方法的设想至少可以追溯到曼哈顿计划。早年的大部分工作, 是偏向采用经各种形式的同位素分离法浓缩过的可溶性铀化合物溶液来选择性地过滤日光, 并用它来照射类似的然而该铀化合物的有化学活性的溶液, 但这些工作的进展很小。

由于需要良好的液态反应堆冷却剂, 这种基本的光化学分离概念在 50 年代又复兴起来。

物理

为了得到纯 ^{204}Hg 作为冷却剂, 人们做了大量的关于 Hg 的选择性激发和反应的工作。到了 60 年代, 这种用普通的光化学反应分离同位素的方法, 已经发展到了它本身所能允许的较完善的水平。

本世纪 60 年代, 激光技术的发展使得光化学获得新的生命力。化学家们重新考虑把光化学作为工业应用的基础。激光的高强度、单色性和高转换效率, 可以在实验室中完成许多激光引发的化学反应。由此而产生了一门新的边缘学科——激光化学。把激光引入同位素分离, 使这一领域的研究进入一个新的实验阶段。1966 年, 蒂法尼用红宝石激光进行了首次同位素分离尝试, 并成功地分离了溴同位素。1970 年, 迈耶(S. W. Mayer)报道了利用振动激励的同位素激光分离。随后, 大量的实验成功地分离了氘、硼、碳、溴、氮、氟、钛、钨、硫、钙、锂等同位素, 强有力地显示了激光分离同位素的工业应用前景。

1973 年, 美国开始激光法分离铀同位素的研究, 次年, 他们的实验证实了这一方案原理上的可行性。为了深入证实其经济现实性, 近 20 年来, 美国先后投入了大量人力、物力、财力, 尝试了种种可能的方案。洛斯阿拉莫斯实验室、劳伦斯利弗莫尔实验室、詹森阿芙柯同位素核公司, 以及埃克森核公司有大量人员从事研究和开发这一高技术。几乎在同一时期, 前苏联和西方各主要工业国家, 如英国、法国、原联邦德国也竞相开展了类似的研究。

常用的激光分离同位素的方法有两种, 即

分子法和原子法.前者利用含有不同同位素的分子的振-转能级的微小差异,用激光进行选择激发.振-转能级的跃迁通常落在红外波段.在这个波段有效率很高的 CO_2 和 CO 激光器,但它们的频率很难任意调谐,以适应不同分子的跃迁.目前常用改变激光器工作条件,或者采用拉曼频移的方法,使得激光频率与含所选择同位素的分子的某一振-转能级共振.如果采用很强的红外激光,则通过振动模式的非线性和不同振动模式之间的混合,可以发生多光子过程,把分子一直泵浦到解离态上去.为了得到更好的选择激发,有时只采用中小功率的红外激光器进行头几步的选择性激发,然后用强的紫外激光直接泵浦到排斥的解离态上去;或者利用激发态的化学反应进行分离.以原子气体存在的同位素,可以用激光选择性多步共振激发和电离某一同位素,然后用电磁场将离子引出来.对铀而言,如果采用当前效率最高的铜激光泵浦染料激光器的方案,则需用三步共振光电离来进行分离.原子法与分子法相比,其光选择性要高得多;同时,与分子的多光子吸收过程相比,人们对激光与原子间相互作用已有更好的理论了解和模型化;而且,用于原子法激光分离同位素(AVLIS)的激光系统的水平发展比分子法更接近工业化生产的要求;因而80年代中后期的研究重心趋向于AVLIS.1982年美国能源部在综合评价了原子法、分子法的优劣之后,选定原子法作为分离铀同位素的扩大试验.1982年4月底,美国一试验性工厂就选用了AVLIS法.该厂原预计1987年投产,1990年决定建造一座大型工厂.1983年以来,美国共投资十亿美元以上作为激光分离同位素的研究费用.

我国对激光分离同位素一直是十分关注的.先后成功地分离了硫、氘、氚、硼、锂等同位素.1985年,获得原子法激光分离铀同位素原理性试验成功,并开始对AVLIS进行实验室阶段的研究.

二、高激发态能级测量和理论

铀原子具有复杂的能级结构和密集的原子谱线.早在1946年,Kiess的研究工作给出了一部分铀原子光谱和能级数据,此后40多年内,国外对铀原子光谱进行了大量工作.由于军事目的和经济原因,许多研究结果是保密的.

为了测定铀原子光谱数据,必须获得铀原子蒸气.一般采用高温蒸发的铀原子束装置.由于铀金属的蒸发温度高达2800K,高温的液态铀有很强的腐蚀性,获得铀原子束的问题在技术上就有一定的难度,不适宜在无防护的实验室内进行.在已知的产生高密度难熔材料原子蒸气的方法中,阴极放电溅射是最简单的方法之一.铀空心阴极灯(UHCD)就是利用阴极溅射来产生铀蒸气源.其主要结构是将铀块作为放电阴极,灯内充有惰性气体,在阳极上加上较高的正电压,使灯在二极之间放电.惰性气体离子由于电场力作用飞向阴极,轰击阴极靶溅射出原子蒸气.由于灯内粒子数密度较高,电子和离子在飞行过程中与较多的原子碰撞,从而产生较多的离子,因而溅射出来的原子较多,蒸气密度也较大.空心阴极中电场较小,斯塔克分裂也小.所以用空心阴极灯作为原子蒸气源进行光电流谱和荧光谱的研究具有操作方便,装置简单和放射性污染小等特点.

由空心阴极灯放电溅射出的铀原子,有一定的速度分布,所以由一般的光谱方法测得的谱线有一定宽度的多普勒线宽.为了减小由此引起的线宽,可采用消多普勒效应的内调制方法.通过单步共振激发并检测灯内光电流的变化或荧光强度的变化,可以获得 ^{235}U 原子2eV附近能级的高分辨光谱的测量结果,如同位素位移和超精细结构量的测量结果.进一步,利用二步共振激发并探测第二激发态的发射荧光,同样能够获得 ^{235}U 原子4eV附近能级的同位素位移量和超精细结构值.

铀的高激发态光谱数据,特别是里德堡态和自电离态数据,是原子法激光分离同位素的

重要参数. 其研究结果一直被国外列为保密的核心内容之一. 在 UHCD 灯中, 使用多台脉冲染料激光器进行多步共振激发. 从光致电离信号中, 可以获得铀原子高激发态的信息. 如图 1, 通过固定 λ_1 和 λ_2 , 扫描 λ_3 , 得到铀原子三色三光子共振光致电离谱, 从而可以得到铀自电离态和里德伯态的能级数据. 类似地固定 λ_1 扫描 λ_2 , 可以得到铀原子双色三光子共振光致电离谱.

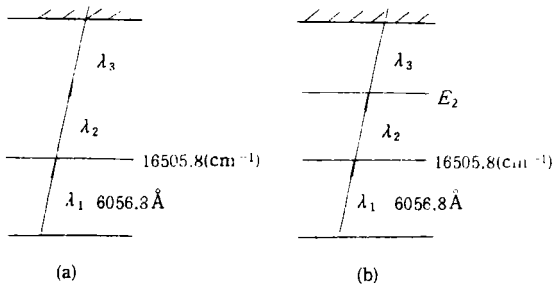


图 1 铀原子三光子共振光致电离的光谱路线

- (a) 铀原子双色三光子共振光致电离;
- (b) 铀原子三色三光子共振光致电离

铀原子里德伯态, 首先是在美国利弗莫尔实验室内被观测到的. 对这些能级的分类, 至今仍是一个十分困难的问题. 对电离限附近的光谱, 可以观测到每 cm^{-1} 有两条或三条谱线. 这些谱线系列受到很大的干扰, 观察一个包括 10 条谱线以上的系列是十分困难的.

就铀原子而言, 高激发态所具有的性质不尽相同, 它可以分成性质截然不同的两组, 即价态和里德伯态.

价态: 一般来说, 这些态相当于双电子激发. 这些态所属的电子结构中, 所有电子都处于主量子数 n 很低的轨道上. 在接近连续态处可以观察到大量价态. 实际上, 每个电子结构都包括大量的能级. 这些能级分布在能量很宽的范围内, 包括接近第一电离限和第一电离限以上的范围.

里德伯态: 当一个价电子的主量子数 n 很大, 其他电子都处在对应于一价离子的最低态时, 组成趋向第一电离限的里德伯序列. 固定角动量量子数 l , 主量子数 n 趋向无穷大时, 可以

物理

得到 l 序列的第一电离限. 不同的 l 序列的第一电离限略有不同. 这些里德伯态的寿命长, 很容易加宽或电离. 当原子实的电子处在对应于一价离子的第一激发态时, 同时令一个价电子的主量子数 n 趋向于无穷大, 则生成的里德伯序列趋向于第二电离极限. 这样, 随着原子实 (原子核加近似的电子) 处在对应于离子的不同激发态, 将有第三、第四个电离极限等等. 一个有趣的原子状态是原子实中有一个电子处在离子的里德伯态, 另一个电子也处在原子的里德伯态. 这种状态叫做双里德伯态. 其实, 这两个主量子数 n 都很大的电子, 很难说哪一个属于原子的, 哪一个属于离子的.

第一电离限以上的价态和里德伯态都称为自电离态, 因为他们都浸沉在连续态的背景里, 能自动把一个电子丢掉. 属于价态的自电离态, 受电场的影响也较小, 在电场内有较窄的脉宽和移动; 属于里德伯的自电离态, 受电场的影响很大, 电场将引起显著的位移和加宽 (斯塔克分裂).

自电离态可以看成分立的价态或里德伯态与连续态的耦合. 分立态和连续态的耦合, 表现为耦合态的线型为 Fano 线型, 相对分立态会产生谱线加宽和小量位移. 耦合越强, 这种增宽与位移就越强, 从束缚态向自电离态跃迁线的宽度反比于分立态的寿命.

对原子法激光分离铀同位素而言, 通过自电离态电离是目前的主要路线. 随着向远离电离限方向移动, 通过连续态背景的电离截面逐渐变小, 但在超过第一电离限 1000cm^{-1} 时, 通过自电离态电离的截面仍旧很大. 在连续带起始处, 通过与不通过自电离态电离的有效截面有时可相差两三个量级.

三、强激光场中的自电离态

在三步共振光电离过程中, 铀原子的电离率与三个激发截面有密切的关系. 一般地, 末级光电离截面远比前二级激发截面小, 因而, 电离量很大程度上取决于末级电离截面. 通过自电

离态共振光电离,相应的截面将显著增强.描述这一过程,在实验工程技术等应用领域多采用速率方程.而用相干激光场的精确描述应采用薛定谔方程.

图 2 给出了各种描述方法的物理图象.(a)

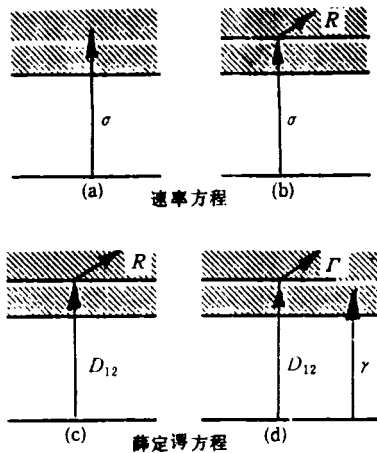


图 2 描述通过自电离态共振光电离的方法

是束缚态到连续态的电离, σ 代表电离截面,表示单位光通量作用下,束缚态到连续态的跃迁几率.(b)是由束缚态到自电离态的电离,自电离态可以看成一种准束缚态,有一定的寿命 $1/R$,这里, σ 是由束缚态向自电离态的激发截面,代表单位光通量的激发光场作用下的激发几率.当自电离态的弛豫速率远大于激发截面,并且激发光场的平均功率比较小时,(b)简化为(a),从速率方程中可以看到,当 $R \rightarrow \infty$ 时,自电离态趋近于连续态.(c),(d)为薛定谔方程处理的示意图.(c)相当于开放二能级系统, D_{12} 为束缚态和自电离态之间跃迁的矩阵元, R 为自电离态向连续态的弛豫速率.这里忽略了束缚态直接向连续态跃迁的几率.(d)为考虑到这一因素的双通道薛定谔方程的物理图象, γ 代表束缚态向连续态跃迁的几率.当自电离态与连续态的耦合强度远比束缚态与连续态之间跃迁矩阵元大,同时激光光强不太强时,二通道薛定谔方程可以简化为单通道薛定谔方程,即(d)简化为(c)的情形.

到此,一个很自然的问题便是:薛定谔方程和速率方程是否等价?也就是说,速率方程中引

入的唯象参量电离截面 σ 在什么情况下仍能保证有明显的物理含义?速率方程实质上仅关注密度矩阵的对角元,而忽略了非对角元的影响.实际上,在薛定谔方程中,非对角矩阵元是对角矩阵元运动方程的驱动项,因而只有在非对角矩阵元弛豫到稳态之后,速率方程才是很好的近似,即激光与原子的作用时间远大于原子本身的弛豫寿命,对脉冲激光激发而言,这就要求脉冲的宽度远比原子系统的弛豫寿命长.

四、原子与激光相干相互作用

如前所述,跃迁矩阵元是铀 AVLIS 工程中最重要光谱参数.激发态原子光电离截面的绝对测量也是原子物理基础理论研究中急需的数据.遗憾的是,其精确测量十分困难.

原子在相干激光场作用下,其上下能级粒子数布居呈 Rabi 振荡,其频率正比于 μE ,这里, μ 为相应的跃迁矩阵元, E 为激光场场强.借此, μ 可以精确测定.

激光分离同位素工程关注的另一个问题是激光光能的利用率.增加铀蒸气的光学厚度有利于激光利用率的提高.因而,有必要考虑光学厚介质中的相干共振传输效应.

二能级原子系统中相干光脉冲的传输效应是传输问题中最基本的内容.对激光的共振电离而言,脉冲激光作用的上级能具有可与脉冲相比拟或更短的到连续态或自电离态的弛豫寿命,即存在强损耗.这时脉冲的能量在传输过程中不断损失,有趣的是,沿脉冲光传输方向上空间各点电离粒子数并不随脉冲能量的降低而同步下降,而是呈现出奇异的周期振荡现象.主要原因是因为脉冲面积在介质中演化不是以相对均匀,平稳的方式衰减,而是表现出阶梯状跳跃式降低,每次降低幅度近似等于(略小于) 2π .这就是说,在传输的大部分空间处,脉冲总面积保持不变,为 $2n\pi$,仅在一些特定的迅变点上,陡然降低 2π ,而对应的能量曲线却几乎始终相对均匀地降低.在强损耗介质中,相干光脉冲仍表现出强烈的形成 2π 孤立峰的能力,脉冲不是以

整体包络传输,而是分裂为一个个彼此独立的 2π 孤立峰行进,每个峰都具有非常强的生存能力,即在损耗引起能量损失情况下,总是自动降低高度,扩展宽度以维持其面积不变,最终在能量消耗殆尽情况下,整个 2π 峰突然解体,迅速消失.

这里,进一步讨论两束脉冲光束与三能级原子的相互作用.不同空间位置的原子在两个光场作用下有不同的时间演化;由于原子系统对光场的反作用(吸收、色散),两个光场在传播过程中也发生了不同的变化.在两束脉冲时间同步的情形下,从对电离产额的影响看,脉冲面积相等时,达到最佳配合,这时,脉冲面积的增大,有利于电离率提高,但是增加速度愈来愈慢,呈现饱和的趋势.另外,在双脉冲面积不相等的情况下,第二级脉冲光取较大值有利得多.实际情况是,当脉冲在原子蒸气中传输时,能量不断被吸收、降低,一般而言,两束脉冲波长不相同,故面积降低速度不一样,这样,即便开始面积相等,逐渐也会产生差别.但为保证获得相应的能量利用率和离子产额,总存在一种最佳脉冲面积值的选择.另一方面,双脉冲在时间上的顺序对激发过程影响甚大.实际传输过程中,光与原子的相干作用将使速度大大降低,而降低速度不一样将造成两束光在时间上分开.脉冲的相对延迟对原子激发非常不利,尤其当第二束脉冲超前于第一束脉冲时,根本就不能使原子激发.有效激发的最佳条件是两束光始终保持时间上同步前进.脉冲的延迟源于原子对光场的吸收-再辐射过程,从麦克斯韦方程得知,延迟量 $\Delta\tau$ 正比于原子对光场的吸收系数 α ,即

$$\Delta\tau \propto \alpha \propto \omega\mu^2$$

当 $\mu_{21}^2\omega_1 = \mu_{32}^2\omega_2$,其中, $\omega_1, \omega_2, \mu_{21}, \mu_{32}$ 分别为二步共振激发的频率和矩阵元,两束光场在介质中传输时,绝大部分光能始终裹挟在一起,时间上保持同步前进,这即所谓多脉冲相干类孤子传输现象.这里,仅关注脉冲时间同步而不要求线型也完全一致,因而是广义上的类孤子现象.

在激光分离铀同位素工程中,实际采用的物理

方案是三步共振级联光电离,因而,须考虑与四能级系统及三脉冲光场的有关的相干传输问题.理论分析指出,为保证原子的有效激发与电离,各级脉冲强度配合,应取脉冲面积相等.如考虑到别的因素,诸如在光学厚介质中传输时,各级光场能量衰减速度不一样导致脉冲不可能始终满足等面积条件,那么强度依次增大是相对有利的选择.另外,为了达到有效的光电离,三脉冲光场的脉宽、相对延迟和频率失谐量也应满足一定的要求.限于篇幅不再讨论.

五、原子与激光相互作用的统计学问题

如前所述,铀原子的高电离电位决定了在激光分离铀同位素工程中必须采用多步共振激发的途径来电离和分离铀 235 ,这种多步共振激发的过程是通过铜蒸汽激光泵浦的染料激光的可调谐性来实现的.由于 ^{235}U 原子具有复杂的能级超精细结构,为了在分离过程中充分地激发原子同时又保持高度的选择性,染料激光的线宽应该正好完全覆盖铀原子的能级超精细结构,这就要求染料激光的线宽必须达到一定的宽度(几百 MHz 到几个 GHz).一般来说,这种线宽的染料激光通常包含着多个激光纵模,各个纵模的相对振幅和相对位相完全随机变化,它们各自独立振荡.在时域上,这种多纵模振荡激光表现为激光脉冲振幅包络的随机起伏和振荡.显而易见,这种多纵模的染料激光器会对多步激发电离铀原子的整个过程产生严重不良的影响.由于各个纵模的相对位相和振幅的无规变化,使得多模激光与原子之间的相互作用(包括激发和电离)也具有很大的随机性,这就会严重影响同位素分离的效率.简单地考虑两能级原子与双模激光场的相互作用,图3中给出等振幅不同相对位相双模激光激发下,原子二能级粒子数布居的比较.显然,在不同相对位相条件下,原子的激发行为存在明显差异.图3中, φ 为双模激光场的相对位相差, N_2 为上能级粒子数布居,实际情况是:振幅以及相对位相都在随机振荡,需要发展一套统计理论来描述

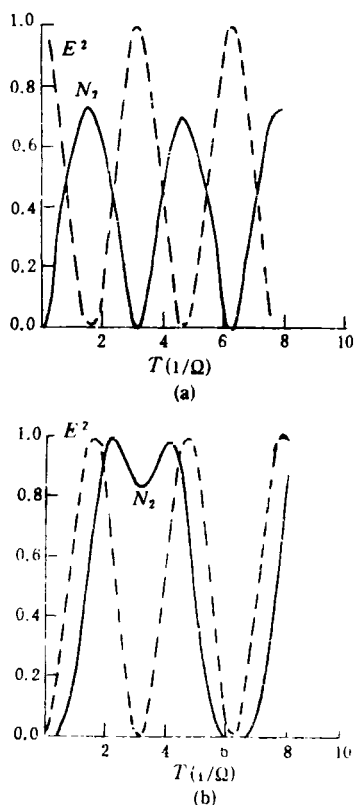


图3 两能级原子与双模激光场的相互作用

N_2 为上能级粒子数布居(电场为

$$E = \cos[(\omega_c - \delta)t] + \cos[(\omega_0 + \delta)t + \varphi],$$

φ 为双模激光场的相对位相差, 偏调 δ 等于 Rabi 频率 Ω ;

(a) $\varphi = 0$; (b) $\varphi = \pi$

这一过程,以解决实际工程中碰到的这一难题.

在实际应用上,为了解决激光场涨落在同位素分离中带来的不良影响,可以采用如下二种方案:一是使用短脉冲铜蒸汽激光器来放大连续波单纵模染料激光,这样,傅里叶变换极限线宽将可以完全光滑地覆盖铯原子的能级超精细结构,从而消除多模激光的不良影响,使同位素分离中染料激光的光谱参数实现最佳化;二是对单纵模激光实行调频,这时,调频光场的边频遍布铯原子的超精细能级之间跃迁频率,达到有效地激发电离铯原子.并且各边频之间位相差是固定的,克服了上述的诸种不利因素.

一些有希望的分离同位素的新方案是:一是采用全固化激光系统,随可调谐固体激光器的发展和完善,其前景十分乐观;再者就是利用半导体激光器,它具有很高的转换效率,在毛细管中,把激光器的频率稍为偏调原子频率,可以引起这个原子的定向运动,称为光感应漂移效应.把半导体激光器和光感应漂移效应结合起来,已经成功地分离了铷的同位素.

稀土磁性材料与分子设计

李国栋

(中国科学院物理研究所,北京 100080)

首先叙述稀土元素磁性的“四高一低”的特点和分子设计的意义及其在材料研究中的作用.然后分别介绍了稀土永磁材料、稀土旋磁(微波)材料、稀土旋电(磁光)材料、稀土磁泡材料和稀土巨磁致伸缩材料的特点,以及分子设计在研究这些稀土磁性材料中的重要作用,并举例加以说明.

一、稀土磁性分子设计^[1-3]

稀土元素是指元素周期表中以 4f 电子壳层充填为特征的从 La 到 Lu 的 15 种元素,广

义稀土元素还包括 Sc 和 Y. 以稀土为组元的材料是目前很受重视的一大类功能材料,特别是稀土磁性材料在基础研究和实际应用中都很重要.其实,稀土元素既不“稀”,也非“土”.例如,地壳中 Ce 的含量(46ppm)超过 Sn, Y 和 Nd 的