

文章编号: 1001-5078 (2006) 03-0178-03

双频 CO_2 激光多光子离解分离硼同位素的研究

张力军¹, 李育德¹, 许德富¹, 杨元杰¹, 陈梅¹, 邹从沛²

(1. 四川大学电子信息学院, 四川 成都 610064; 2. 中国核动力设计研究院核燃料及材料国家重点实验室, 四川 成都 610064)

摘要: 使用一种可调谐双频 TEA CO_2 激光器输出的空间重叠的双频 CO_2 激光对 BCl_3 进行多光子离解, 在没有聚焦的情况下照射反应池中 BCl_3 和 O_2 的混合气体 150 次, 生成物 (B_2O_3) 中 ^{10}B 的富集系数达到 1.80。

关键词: 双频 TEA CO_2 激光器; 多光子离解; 激光分离同位素; 硼 - 10

中图分类号: TN249 **文献标识码:** A

Research on Multiphoton Dissociation and Isotope Separation of Boron by Dual-wavelength CO_2 Laser

ZHANG Li-jun¹, LI Yu-de¹, XU De-fu¹, YANG Yuan-jie¹, CHEN Mei¹, ZOU Cong-pei²

(1. School of Electronics and Information Engineering, Sichuan University, Chengdu 610064, China;

2. National Key Laboratory for Nuclear and Material, Nuclear Power Institute of China, Chengdu 610041, China)

Abstract: A kind of dual-wavelength tunable TEA CO_2 laser, which can produce dual-wavelength laser pulse and in the laser pulse the two optical fields overlap partially in the space, is used in the experiment of isotope separation of boron by multiphoton. The laser pulse irradiated the mixtures of BCl_3 and O_2 in the reactive pool 150 times without being focused on. The enrichment coefficient of ^{10}B reached 1.80 in the product (B_2O_3).

Key words: dual-wavelength TEA CO_2 laser; multiphoton dissociation; isotope separation by laser; boron - 10

1 引言

^{10}B 有很高的中子吸收截面, 在核科学技术中具有重要意义。富含 ^{10}B 的中子吸收棒用于控制核反应堆的反应速率, 含 ^{10}B 的各种特殊合金是各种核动力设施、核废料储存运输等所必需的主要材料。此外, 高浓度 ^{10}B 还用于医疗中, 如借助 ^{10}B 而进行的中子治癌。因此, 分离硼的同位素具有重要意义。

TEA CO_2 激光器诞生不久, 1974 年 R. V. Ambartzumian^[1] 就提出用强红外激光选择性多光子离解分离同位素的方法, 并用脉冲 CO_2 激光 (932.89 cm^{-1}) 照射 BCl_3/O_2 混合物, 照射 57600 次, ^{10}B 富集系数为 8。1981 年, 前苏联 Karlov N. V. 等^[2] 在依靠 $^{10}\text{BCl}_3$ 和 $^{11}\text{BCl}_3$ 间的强烈的 V-V 交换条件下实

现了非线性激光分离, $^{10}\text{BCl}_3$ 得到浓缩, 富集系数为 1.57 ± 0.2 , 与理论估计一致。1995 年日本 Suzuki Kazuya 等^[3] 利用 BB_{13} 在 O_2 条件下的振动激发化学反应实现了 ^{10}B 和 ^{11}B 的分离, $^{10}\text{BB}_{13}$ 在 $11.68\mu\text{m}$ 波长吸收, 而 $^{11}\text{BB}_{13}$ 在 $12.18\mu\text{m}$ 波长处吸收, 使用的 NH_3 激光器波长为 $11.7\mu\text{m}$ 、 $12.08\mu\text{m}$ 、 $12.26\mu\text{m}$ 。在 1.5 千 (注 1 千 = 133.3224 Pa) BB_{13} 和 4.5 千 O_2 条件下最大富集系数 ($^{10}\text{B}/^{11}\text{B}$) 是 4.5。1999 年、

基金项目: 中国核动力研究设计院核燃料及其材料国家重点实验室基金资助。

作者简介: 张力军, 男, 硕士研究生, 从事气体激光研究工作。
Email: zhangli824@sohu.com

收稿日期: 2005-07-02; 修订日期: 2005-09-19

2000年日本科学工作者 Pronka P. P. 等^[4]、Hashida Masaki等^[5]采用自由电子激光器研究了硼同位素的分离。前者 38cm³ 容积的金属池内充 2 兆 BC₃ 和 10 兆 H₂S, 最大离解产额在 BC₃ 共振频率红移 10cm⁻¹ 处, 最大选择系数 1.5, 后者最大的选择系数为 1.45。

值得特别重视的是人们对于最大离解截面相应频率的“红移”本质性认识, 即这种“红移”是多原子分子振动的非简谐性造成的, 同一模内, 低振动能级间的跃迁频率高, 高振动能级间的跃迁频率低, 为了兼顾高、低振动能级间的吸收跃迁而实现多光子离解或高振动能级激发, 选择的辐射波长应适当大于基频波长, 即应有“红移”, 因此建议^[4]采用 TEA CO₂ 激光和自由电子激光双波长激励, 后者将分子激发到 $v = 3-4$ 的能级, 前者采用“红移”后的波长以完成离解, 这将有助于选择性和离解产额或光化学反应产额的提高。

双频激光多光子分离同位素已较早被人研究, 认为分离的阈值能量密度将比单频法有数量级的下降^[6]。但是本文所采用的双频法并不是采用文献[4, 6]所指出的双频法, 而是采用与单频法“红移”很接近的双频率波的多光子离解。实验表明, 这种作法明显降低了阈值能量密度, 并提高了选择性, 取得了好的分离效果。

2 实验与结果

如图 1 所示, A₁ 和 A₂ 为串联在一起的两节放电室, 每个放电室的体积均为 100 × 3 × 3 cm³, 放电室侧壁用有机玻璃制成, 横截面为圆形。室内两个主电极为黄铜制成的双曲函数型电极, 以获得均匀放电。激活介质的预电离由主放电电极两侧放置的间距为 4cm 的预电离针形成, 预电离有利于主放电场均匀放电, 不易产生弧光。B₁ 和 B₂ 为粘贴在放电室两侧的布氏窗, 起密封和通光作用, 且使输出光场为线偏振光。R 为反射率 80% 的锗镜, 充当输出镜。G₁ 是 150 线/mm 球面闪耀光栅, 曲率半径 10m, 衍射效率 95%, 宽 56mm, 高 36mm; G₂ 为 150 线/mm 的平面光栅, 衍射效率 95%, 宽 48mm, 高 52mm。实验中, 由于双波长同空间谐振存在谱线增益竞争, 我们通常以后边的 G₁ 为强线选择光栅。锗

镜和两光栅用经纬仪支撑, 经纬仪固定在可左右平移的光学支架上, 两光栅的角度可精确调整且可随支架左右平移, 整个系统用平行光管校正。两光栅在放电室的腔轴线上间距为 20cm, 光栅 G₂ 和锗镜在腔轴上间距为 3.6m。D 为 CT—50 型单色仪用来测定波长。



图 1 双波长可调谐激光器

Fig 1 produce dual-wavelength in overlapped space partially in a laser

激光器中充气比例: CO₂ N₂ He = 80 80 280, 总气压 58652 Pa; 主放电电容器电容 0.1 μF, 放电电压 35 kV。

光栅 G₁ 和光栅 G₂ 在空间上相互交叠, 在激光器振荡过程中, 两个光栅相互利用, G₁ 对 G₂ 光栅选择的支线光场有贡献, G₂ 对 G₁ 光栅所选择的支线光场也有贡献, 同步输出的两个波长不同的激光脉冲在空间上绝大部分重叠。

激光器的输出总能量及各振荡支线的能量与两光栅 G₁、G₂ 的有效谐振面积有关。实验中, 我们使 G₁ 表面中央竖直轴与腔轴相交处, 可以通过调节 G₂ 竖轴线与腔轴的距离来改变两光栅的有效工作面积, 从而得到不同的支线能量比。

通过示波器测出激光输出脉冲中长短波长脉冲相对滞后约 400 ~ 800 ns, 长短波脉宽均约为 100 ~ 150 ns, 与单频驻波腔输出激光脉宽 150 ns 较为接近。

实验测得, 此双频可调谐 TEA CO₂ 激光器在分离硼同位素所需的 10 μm 带 P(6) ~ P(40) 及 R(14) ~ R(40) 均能实现空间重叠的双频激光输出, 且总能量均可达到 1 J 或以上。本实验采用 10 μm 带 P(34) 和 P(36) 双频激发取得了较好效果。

分离硼同位素所用的反应池长 30 cm, 内直径 4 cm; 窗口贴片为 NaCl 晶体。

激光从锗镜出射后未加透镜会聚直接射入反应池。

天然物质中 ¹⁰B 和 ¹¹B 的含量分别为 19.0% 和 81.0%, 我们用红外谱测得的比例与此基本一致。通过红外光谱测量实验前后混合气体中 ¹⁰BC₃ 和

$^{11}\text{BCl}_3$ 的含量,光谱图中 $^{10}\text{BCl}_3$ 和 $^{11}\text{BCl}_3$ 的吸收峰面积与它们的物质的量成正比,反应后生成物 B_2O_3 中的 $^{10}\text{B}_2\text{O}_3$ 和 $^{11}\text{B}_2\text{O}_3$ (均为固体粉末存于反应池壁) 的含量通过反应前混合气体中 $^{10}\text{BCl}_3$ 和 $^{11}\text{BCl}_3$ 的含量减去反应后混合气体中 $^{10}\text{BCl}_3$ 和 $^{11}\text{BCl}_3$ 的含量而得到。

下面为选用的一组试验前后的谱图(图 2)。

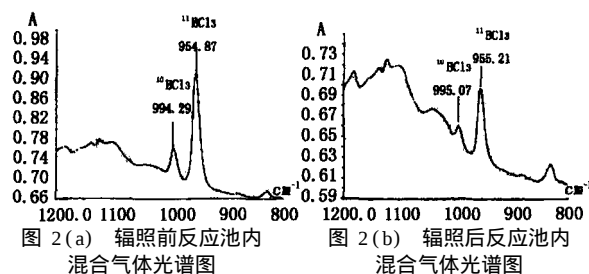


图 2(a) 辐照前反应池内混合气体光谱图

图 2(b) 辐照后反应池内混合气体光谱图

反应池内气体: BCl_3 为 101.308pa; O_2 为 565.192pa

照射条件为: P(34) + P(36), 能量总输出 1.5J, 照射 150次。

根据文献[1],可分别求出残留物和生成物中相应同位素分子的富集系数。

残留气体中 $^{11}\text{BCl}_3$ 的富集系数为:

$$\left(\frac{^{11}\text{BCl}_3}{^{10}\text{BCl}_3} \right)_{\text{后}} \left(\frac{^{11}\text{BCl}_3}{^{10}\text{BCl}_3} \right)_{\text{前}} = 1.56$$

生成物 B_2O_3 中 $^{10}\text{B}_2\text{O}_3$ 的富集系数为:

$$\frac{^{10}\text{BCl}_3 \text{ 离解量}}{^{11}\text{BCl}_3 \text{ 离解量}} \left(\frac{^{10}\text{BCl}_3}{^{11}\text{BCl}_3} \right)_{\text{前}} = 1.80$$

式中的比值为两种同位素分子的含量比,分母均为激光辐照前的比值,分子为辐照后残留气体中的含量比或为离解量的比值,根据文献[1],离解量为照射前的量减去残留物中的对应量而得。

3 讨论

我们选用 CO_2 001—100带 P(34)和 P(36)支线激光辐照时取得了较好实验结果,它们对应的波数分别为 931.00cm^{-1} 和 929.02cm^{-1} 。由于多原子分子振动的非谐性造成的“红移”, $^{10}\text{BCl}_3$ 的最大离解面不在其共振频率处(即不在 $\nu_1 + \nu_2$ 组合带 951cm^{-1}), $^{11}\text{BCl}_3$ 的最大离解截面也不在 ν_3 模 956cm^{-1} 处,而是向长波方向移动。故人们^[1,5]采用

单频辐照时在波数 932.89cm^{-1} (CO_2 激光)和波数 944cm^{-1} (FEL)处获得了好的分离效果。我们选的双频均与 932.89cm^{-1} 很接近,但只用了极少的脉冲(与[1]的 57600次比较)便获得了良好的分离效果。在激励过程中,在两种能量相差很小的红外光子的激励下,分子从低能级向高能级激励的有效能级台阶更多,从而大大提高了激励效率,降低了多光子离解的阈值密度要求,从而使我们能以不聚焦的光束实现多光子离解。可能由于两支支线输出光束的能量比例和时间相对滞后的原因,影响了 BCl_3 的离解产额和对 $^{10}\text{BCl}_3$ 的离解选择度的进一步提高。

两波长脉冲时间特性上的相对滞后很难把握,其受仪器的人为校准、振动、温差等不在测量范围内的偏差影响较大,当两波长脉冲相对滞后时间大于 V—V 跃迁时间较多时,多原子分子不能有效地向高振动能级连续跃迁,其分离效果就不大理想。

关于进一步提高双频 TEA CO_2 激光器时空重叠性和能量输出的实验和双频多光子离解分离同位素理论解释还需要进一步研究。

参考文献:

- [1] R V Ambartzumina, V S Letokhov, E A Ryabov, et al Isotope selective chemical reaction of BCl_3 in a strong infrared laser field[J]. Sov. Phys-JETP lett, 1974, 20: 273 - 275
- [2] Karlov, N V Ovchenkov, A L Petrov, et al Laser isotope separation in collision of molecules with a cooled solid surface[J]. Journal of Soviet Laser Research, 1981, 2 (3): jul-sep, 213 - 238
- [3] Suzuki, Kazuya Separation of boron isotopes by infrared Laser[J]. JAERI-Conf, 1995, 2: 1019 - 26
- [4] Hashida Masaki, Matsuoka Masayori, Izawa Yasukazu, et al FEL multiphoton dissociation and isotope of boron[J]. Nuch. Instrum. Methods Phys Res, Sect A, 1999, 429 (1 - 3): 485 - 488
- [5] Hashida Masaki, Izawa Yasukazu, Nagaya Yukinori Multiphoton dissociation and isotope separation of boron by FEL[A]. Proc. SPIE-Int. Soc. Opt. Eng., 2000, 3886 (high-power lasers in Energy Engineering), 713 - 720
- [6] E P Velikov, V S Letokhov, A A Makarov, et al Isotope separation by multiphoton dissociation of molecules with high-power CO_2 laser radiation[J]. SOV. J. Quantum Electronics, 1979, 9(2): 172 - 186