[23] Noda S, Yamamoto N, Kobayashi H *et al*. Appl. Phys. Lett., 1999, 75: 905
[24] Baba T, Matsuzaki T. Jpn. J. Appl. Phys. Part 1, 1996, 35: 1348
[25] Cheng C C, Scherer A. J. Vac. Sci. Technol., 1995, B13: 2696
[26] Miguez H, Lopez C, Meseguer F *et al*. Appl. Phys. Lett., 1997, 71: 1148
[27] Borisov R A, Dorojkina G N *et al*. Appl. Phys., 1998, B67: 765
[28] Borisov R A, Dorojkina G N, Koroteev N I *et al*. Laser Physics, 1998, 8: 1105
[29] Sun H B, Matsuo S, Misawa H *et al*. Appl. Phys. Lett., 1999, 74: 786
[30] Dvornikov A S, Rentzepis P M. Opt. Commu., 1997, 136: 1
[31] Albota M, Beljonne D, Bredas J L *et al*. Science, 1998, 281: 1653
[32] Reiss S M. Opt. & Pho. News, 1999, 10: 31

超短脉冲激光同位素分离*

陈正林　张　杰
(中国科学院物理研究所　光物理实验室　北京　100080)

摘　要　同位素的分离极为重要.传统的分离方法是气相分离法.文章详细介绍了有别于该方法的两种激光同位素分离方法.其基本原理是利用离心分离作用产生同位素的分离.具体说来就是,一个旋转等离子体柱在一定条件下达到流体力学平衡时,其中的同位素离子沿径向将形成高斯密度分布.质量数越高的离子,密度分布的高斯半径越大,从而在径向形成具有不同丰度的同位素分布.理论和实验表明,该方法能产生较高丰度的同位素,具有良好的实用化前景.

关键词　超短脉冲激光,同位素分离

ISOTOPE SEPARATION WITH ULTRA-SHORT PULSE LASERS

CHEN Zheng-Lin　ZHANG Jie
(Laboratory of Optical Physics, Institute of Physics, Chinese Academy of Sciences, Beijing　100080)

Abstract　Isotope separation is of great value and traditionally it is achieved by dissipation, which is very complicated and inconvenient. Isotope separation with lasers is quite different from the traditional method, and is expected to give richer isotope yields. The principle of isotope separation with lasers is based on centrifugal force. Generally, when the rotating plasma column is in hydrodynamic equilibrium, the density distribution of different isotope ions is Gaussian along the radial direction, with a larger Gaussian width for ions with larger mass. Consequently, the enrichment along the radial direction radius is different for ions with different mass, thus isotopes with different mass can be separated.

Key words　ultra-short pulse laser, isotope separation

1　引言

同位素的分离极为重要.在曼哈顿计划中,科学家们为了分离 U - 238 和 U - 235 建立了庞大的工厂,直到今天,同位素的分离仍然保持了相当大的规模.同位素分离的主要实用方法是气相分离,其原理是:利用轻重离子的扩散速度不同而产生分离.后来,随着研究的进展,人们开始发展了等离子体离心分离技术.最初的等离子体离心分离技术起源于五六十年代,其原理是利用气体放电产生部分离化的气体等离子体,该等离子体在外加的轴向磁场作用下产生角向旋转从而产生径向分离.1971 年,Bonnevier 在部分离化旋转氖放电等离子体中得到了丰

* 国家自然科学基金(批准号:19825110)和国家高技术惯性约束聚变计划资助项目
2000 - 04 - 18 收到初稿,2000 - 06 - 07 修回

© 1994-2008 China Academic Journal Electronic Publishing House. All rights reserved.　http://www.cnki.net

度为 5 %的^{22}Ne[1],James 和 Simpson 后来报道获得了丰度为 20 %的^{22}Ne[2]. 1978 年,Walsh,Brand 和 James 将铜和镍掺入旋转氩等离子体中,测得了该两种金属在径向的分离[3]. 然而,Wijnakker 和 Granneman[4]在 1982 年发表文章时指出,弱电离等离子体离心分离将受到中性原子粘性的强烈限制,由于中性原子粘性的作用,等离子体的旋转速率将低于阿尔芬临界速度,因而导致质量数分离的效率低. 对于部分离化等离子体,当离子的旋转动能与中性原子的离化能相等时,将达到阿尔芬临界速度. 此时,进一步输入到旋转等离子体的能量将主要用于残余中性气体的离化,因而该方法几乎不可能实用.

1981 年,Krishnan 等人发现了另外一种很有前途的等离子体离心分离方法——激光诱导等离子体放电离心分离(vacuum-arc centrifuge)[5]. 其原理是,利用激光辐照阴极材料,诱导该阴极材料在高压下放电,形成高度离化的等离子体,该等离子体在漂移过程中受到外加轴向磁场的作用产生旋转,继而导致具有不同质量数离子的分离. 该方法在 80 年代得到了较为详细的研究[6—11],其优点是由于离子高度离化使得其无阿尔芬临界速度的限制,分离效率高,具有实用化的前景,但其缺点是需要外加强大的轴向磁场而给实用化带来困难.

1999 年,Pronko 等人发表文章[12],称发现了另外一种与该方法原理极为相似的一种同位素分离方法,但该方法不需要外加磁场,故将更为简便,具有很好的实用化前景. 下面将分别对最后这两种方法进行详细介绍.

2 激光诱导等离子体放电离心分离

激光诱导等离子体放电离心分离的基本原理是多离子系旋转等离子体稳态流体模型. 其物理图象简单描述如下:具有多种成分的完全离化等离子体在漂移过程中,径向的运动将使其产生强烈的角向旋转. 由于离子与离子、离子与电子之间的碰撞动量交换以及离子的径向输运将使得等离子体的角向旋转达到流体力学平衡:等离子体近似为一个严格的转子,其中不同种类的离子的旋转角速度相等;由于电子与离子具有不同的角向旋转速度,故将产生一角向电流,该电流在外加轴向磁场的作用下将产生一径向力 $J \times B$,该径向力将与径向的等离子体离心力、等离子体压力达到平衡,从而约束住等离子体达到稳态的平衡. 此时,其中的离子密度将达到稳态分布——高斯分布,高斯分布沿径向分布的宽度与离子的质量数相关,质量数越大,宽度越宽,从而密度沿径向的分布越平坦. 其结果是,轻离子集中在轴心附近,质量数大的离子则在较大的径向位置具有较高的丰度,产生同位素分离. 达到平衡时的分离因子为

$$q = \frac{[n_i(r)]^{1/Z_i}/[n_j(r)]^{1/Z_j}}{[n_i(0)]^{1/Z_i}/[n_j(0)]^{1/Z_j}} = \exp\left[\frac{\omega^2 r^2}{2kT_i}\left(\frac{M_i}{Z_i} - \frac{M_j}{Z_j}\right)\right],$$

其中 ω 为等离子体的旋转角速度,T_i 为等离子体温度,M_i,M_j 分别为离子 i,j 的质量,Z_i,Z_j 分别为离子 i,j 的电荷态,$n_i(r)$,$n_j(r)$,$n_i(0)$,$n_j(0)$ 分别对应离子 i,j 的在半径 r 和零位置的密度. 当 $Z_i = Z_j$ 时,分离因子即为位置 r 和位置零处离子 i,j 的相对丰度比 $q_0 = \exp(\Delta M\omega^2 r^2/2kT_i)$,离子半径越大,旋转速度越快,质量数相差越大,同位素分离的效果会越好.

图 1 是激光诱导等离子体放电离心分离同位素装置的示意图. 将需要分离的材料制作成靶,在靶与阳极网之间加有高压. 当激光光束辐照到靶上时,将产生等离子体,继而在高压的作用下产生强烈的放电电流,其中富含大量需要分离的离子. 由磁场线圈产生强大的均匀轴向磁场. 阴极区附近的等离子体在向收集区漂移过程中,具有一定的径向运动速度,从而在轴向磁场的作用下产生强烈的角向旋转,在收集区形成不同质量数离子的分离. 典型的实验条件如下:漂移管长约 1 m,直径 15 cm,真空度约 10^{-6}—10^{-7} Torr (1 Torr = 133.332 Pa);靶长约 1 cm,直径约 2 cm;激光束为波长 10.6 μm 的 CO_2 激光,脉宽约 100 ns,能量约几焦耳;放电电流约几 kA. 在漂移过程中,等离子体近似为一严格的转子,

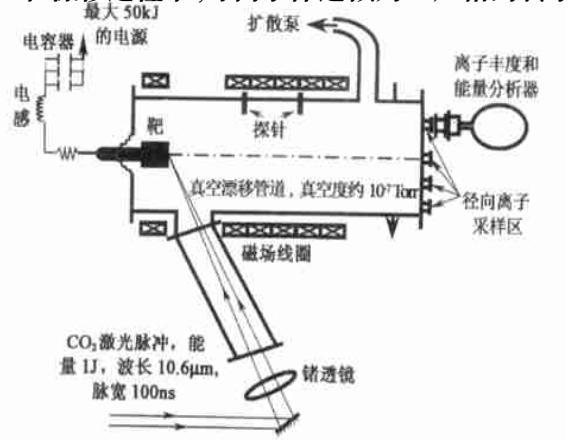

图 1 激光诱导等离子体放电离心分离装置示意图

© 1994-2008 China Academic Journal Electronic Publishing House. All rights reserved. http://www.cnki.net

其转动角速度大约在 2.5 —6 $\times 10^4$ rad/ s.

实验过程中,利用谱线的多普勒展宽诊断等离子体温度和旋转速度:由 He - Ne 激光器产生 6578A 波长的激光谱线,经过等离子体后将产生多普勒展宽,由获得的谱线宽度即可推知等离子体的温度 T_i,而由获得的谱线中心位置的红移和蓝移即可获得等离子体的旋转速度。另外一种方法是利用朗缪尔探针:将两个或多个探针沿角向置于不同的位置,由于等离子体柱的旋转,探针获得的电流将产生扰动,不同位置的探针获得的电流位相将有所不同,由其位相差可以推知等离子体的旋转速率,该方法还可用来获得等离子体柱的角速度的方向. 上述两种测量方法可以相互对比. 实验发现,在 $0 \leq r \leq 3$ cm时,等离子体近似为一个严格的转子,其转动角速度小于离子的磁场回旋频率,典型的角速度为 $\sim 10^5$ rad/ s,方向沿 E $\times$B. 另外,实验还利用朗缪尔探针来诊断等离子体的势场分布和离子密度分布:将多个探针沿径向置于不同位置,由测得的电流可以获得势场 Φ 沿径向的分布,由测得的饱和电流可以推知等离子体中离子沿径向的密度分布. 实验得到的势场分布沿径向呈抛物线分布,轴心位置最小,密度则呈高斯分布,与理论的预测吻合. 在实验中,人们还研究了所有这些参数与外加磁场、放电电流以及靶的几荷结构等因素之间的关系.

离子丰度的测量手段主要有以下几种方法. X 射线光电子谱化学分析(ESCA)方法和二次质谱分析方法,这两种方法都是在从图 1 中的采样区获得样品后,将该样品做二次分析,得到的是时间积分的丰度值. 另外一种方法是扇形质量分析仪或者质谱仪. 该方法是将一个质谱仪直接耦合(见图 1)到收集区进行在线测量,能实现一定的时间分辨. 首先利用飞行管道、扇形分析器或其他根据电场或磁场分离原理制作成的质谱仪和能量分析仪,将入射的离子按荷质比或能荷比分离,被分离开的离子再通过电子倍增管或者 MCP 接收放大形成较大的电流,继而转换成电压脉冲,由甄别器获得计数,由此将获得离子谱及其分布. 实验研究了多种元素在多种不同条件下同位素分离的丰度,结果表明,该方法能够获得较高的同位素分离.

3 超短脉冲激光同位素分离

美国密西根大学的研究小组在 1999 年 9 月出版的《Physical Review Letter》上报道了他们利用超短脉冲激光分离同位素的工作. 利弗莫尔(LLNL)的物理学家 Todd Ditmire 认为该方法有潜在的应用前景,可以为科学研究、工业和医药部门提供廉价的同位素源. 该小组在利用激光辐照靶材产生的等离子体生长一种超硬薄膜 ——BN 薄膜时,发现其中的同位素可以在径向产生很强的分离. 实验利用掺钛蓝宝石激光器产生超短脉冲激光,激光脉宽 150 —200 fs,波长 780 nm,S 偏振,重复频率 10 Hz,与靶面法线方向成 45°角斜入射,聚焦打靶,靶上激光强度约为 10^{13} —10^{15} W/ cm^2. 靶材为 BN 和 GaN. 实验中,当超短脉冲激光与靶等离子体相互作用时(如图 2),将产生激光烧蚀流(laser - ablation plume),同时将产生自生环形磁场和轴向磁场. 烧蚀流在远离靶面的运动过程中,由于洛伦兹力的作用,环形磁场将使其中的离子横向运动,而轴向磁场则冻结在等离子体中使等离子体产生类似于本文第 2 节中的强烈的角向旋转,从而产生同位素分离:在轴心位置轻元素的丰度高,而在偏离轴心位置重元素的丰度高.

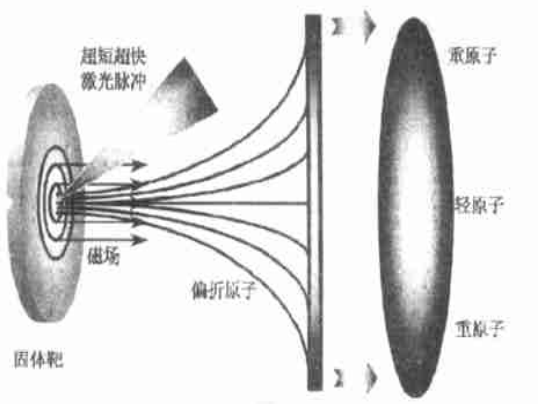

图 2 超短脉冲激光同位素分离实验示意图

实验的靶室由两部分组成:烧蚀靶室即激光与靶相互作用区,其真空度为 5 $\times 10^{-9}$ Torr. 并可在实验中充 N_2 背景(为了做烧蚀流与气体背景相互作用的比较实验);与烧蚀靶室通过微分分子泵相连的真空室(之间有两个 4 mm 的限位孔),其中放置球状扇形静电分析仪(spherical - sector electrostatic analyzer). 实验通过两种方法诊断同位素分离的丰度:一是,距靶面约 7 cm 处置一硅基片(见图 2),让烧蚀流直接沉积其上,实验结束后再将该基片上沉积的材料利用 2.5 MeV He^+ 卢瑟福背散射谱仪(RBS)[13]进行分析. 二是,让烧蚀流穿越 1.1 m 的飞行距离到达球状扇形静电分析仪[14—16],该分析仪是一个利用静电分离原理的离子能量分析仪(见图 3),带有微通道板(MCP),有一个 2 mm 的接收

© 1994-2008 China Academic Journal Electronic Publishing House. All rights reserved. http://www.cnki.net

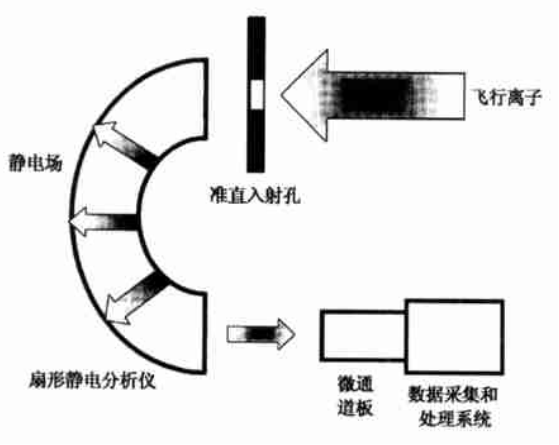

图 3　离子能量分析仪示意图

孔,可通过改变扇形板上的电压偏置而获得各种电荷态离子的能谱. 该小组进行了两种材料(BN 和 GaN)在两种条件(无 N_2 背景和有 0.8 mTorr N_2 背景)下的同位素分离实验. 对于 BN 材料,使用的激光能量为 50J/cm^2,脉宽为 200 fs,强度为 2.5×10^{14}W/cm^2;而对于 GaN 材料,激光能量为 3.3 J/cm^2,脉宽为 150 fs,强度为 2.2×10^{13}W/cm^2. 结果表明:(1)烧蚀流的中心区 B^{10},Ga^{69}相对于 B^{11},Ca^{71}的丰度大大增加,即轻元素的丰度相对于自然丰度在中心区大大增加,对于 B^{10},大约高出 20 %,而在边缘区则增加量较小. (2)在无 N_2 背景条件下,对于同位素 B^{10}和 B^{11},在烧蚀流中可以获得从 +1 到 +5 离化态的同位素离子,其中离化态为 +3 和 +4 的 B^{10}和 B^{11}离子具有较高的丰度比,远远高于自然界中的丰度. (3)离化态较高的离子大量分布在较高的能量态,即具有更高的飞行动能. (4)在有 N_2 背景的条件下,由于与 N_2 的碰撞,高离化态的离子将大量减少,对于 B 元素来说,大量的离子处于 +1 离化态. 由公式 $R(r)/R_0=\exp(\Delta m\omega^2 r^2/2kT)$[其中 $R(r)$和 R_0 为 r 处和中心位置的丰度,Δm 为同位素之间的质量差,T 为等离子体的温度,ω为旋转角速度,k 为玻尔兹曼常数],取 T 为 0.5 eV,由实验数据,估算旋转角速度 ω在 $r=2.5$ cm 时至少为 3.3×10^5 rad/s,假定轴向磁场均匀分布,对应于该旋转角速度的磁场大小应大于 0.4 T. 对照以前的实验结果,在烧蚀流飞越的区域,磁场可达 4.4 T,故认为,实验中产生的同位素分离是由磁场的作用导致的,与第 1 节中的机制相似.

4　应用

虽然超短脉冲激光同位素分离有待于详细研究,其机理还不十分明确,但它相对于激光诱导等离子体放电离心分离具有明显的优点:在同样可以达到较高的同位素丰度的条件下,它不需要外加一个强大的磁场,因此可以预见,随着台面超短脉冲激光的发展,其分离装置将非常小,实现起来将更为简便,具有良好的应用前景. 目前,同位素广泛应用于国防科技、医药和工业生产中,许多元素的同位素具有较为独特的性质[17],但是,由于传统的分离方法过于庞杂,同位素分离的生产成本很高,限制了同位素的大量使用,如果能降低其成本,将对同位素的应用具有重要的意义.

另一方面,由于超短脉冲激光同位素分离与激光等离子体中的磁场相关,它包含了自生磁场与等离子体作用的信息,故可以用来诊断激光等离子体内部的自生磁场. 我们知道,在超短脉冲激光与等离子体作用过程中将会产生强烈的自生磁场,其大小可以达到兆高斯量级,了解磁场的产生机制对于激光等离子体相互作用过程的研究极为重要. 但是,由于磁场伴生于等离子体的内部,实验诊断较大地受到等离子体状态的影响,很难精确测定,诊断手段有限,传统的见诸文章的方法仅有法拉第旋转、塞曼分裂和探测线圈等有限的几种方法. 利用同位素分离测量磁场将丰富磁场诊断的手段,并与其他的方法比较,将有可能获得更为精确的磁场的特性.

参　考　文　献

[1] Bonnevier B. Plasma Phys. ,1971 ,13 :763
[2] James B W ,Simpson S W. Plasma Phys. ,1976 ,18 :289
[3] Walsh C J ,Brand G F ,James B W. Phys. Lett. ,1978 ,67A :33
[4] Wijnakker M M B ,Granneman E H A. Z. Naturforsch. ,1982 ,35A :883
[5] Krishnan M ,Geva M ,Hirshfield J L. Phys. Rev. Lett. ,1981 ,46 :36
[6] Krishnan M. Phys. Fluids ,1983 ,26 :2676
[7] Geva M ,Krishnan M ,Hirshfield J L J. Appl. Phys. ,1984 ,56 :1398
[8] Krishnan M ,Prasad R R J. Appl. Phys. ,1985 ,57 :4973
[9] Prasad R R ,Krishnan M. Rev. Sci. Instrum. ,1986 ,57 :74
[10] Prasad R R ,Krishnan M J. Appl. Phys. ,1987 ,61 :113
[11] Prasad R R ,Krishnan M J. Appl. Phys. ,1987 ,61 :4464
[12] Pronko P P ,Van Rompay P A ,Zhang Z *et al*. Phy. Rev. Lett. ,1999 ,83 :2596
[13] Doolittle L R. Nuclear Instrument and Methods in Physics Research ,1985 ,B9 :344
[14] Van Rompay P A ,Nantel M ,Pronko P P. Applied Surface Science ,1998 ,127 - 129 :1023
[15] Laska L *et al*. Rev. Sci. Instrum. ,1996 ,67 :950
[16] Guethlein G *et al*. Rev. Sci. Instrum. ,1995 ,66 :333
[17] Haller E E J. Appl. Phy. ,1995 ,77 :2857

© 1994-2008 China Academic Journal Electronic Publishing House. All rights reserved.　http://www.cnki.net