

CO 激光激活化学反应分离铀同位素*

张 健 吴念乐 赵 钧 徐亦庄

(清华大学现代应用物理系, 北京, 100084)

衷庆华

(中科院化学所分子反应动力学国家实验室, 北京, 100080)

张复实 李国强 宋心琦

(清华大学化学系, 北京, 100084)

郭松涛 应纯同

(清华大学工程物理系, 北京, 100084)

摘要: 由光声光谱方法测得的 $^{235}\text{UF}_6$ 与 $^{238}\text{UF}_6$ 的 $3\nu_3$ 吸收光谱, 选择出分离铀同位素的最佳 CO 激光谱线, 对 UF_6 与 HCl 的化学反应进行了激光催化化学反应实验, 从而论证了 CRISLA 方法的可行性。

关键词: CO 激光 同位素分离 UF_6 化学反应 催化

Chemical reaction uranium isotope separation by CO laser activation

Zhang Jian, Wu Nianle, Zhao Jun, Xu Yizhuang

(Dept. of Modern Appl. Phys., Tsinghua Univ.)

Zhong Qinghua

(National Lab. of Molecular Reaction Dynamics, Institute of Chemistry, Academia Sinica)

Zhang Fushi, Li Guoqiang, Song Xinqi

(Dept. of Chemistry, Tsinghua Univ.)

Guo Songtao, Yin Chuntong

(Dept. of Engineering Phys., Tsinghua Univ.)

Abstract: The feasibility of CRISLA method is confirmed by the laser catalytic reaction of UF_6 and HCl using the optimum CO laser spectrum of uranium isotope separation which is selected from the $3\nu_3$ optoacoustic absorption spectra of $^{235}\text{UF}_6$ and $^{238}\text{UF}_6$.

Key words: CO laser isotope separation UF_6 chemical reaction catalysis

一、引 言

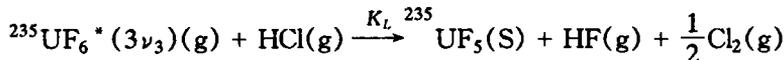
所谓 CRISLA 方法, 系美国 J. W. Eerkens^[1~3]提出的激光加速化学反应分离同位素方法 (Chemical Reaction Isotope Separation by Laser Activation) 的缩写。他用 CO 激光为光源, 利用 UF_6 的 $3\nu_3$ 光谱实现了对 ^{235}U 的浓缩^[4]。其基本思想为: UF_6 分子的 ν_3 振动模的三倍频 (即 $3\nu_3$) 正好位于 CO 激光 $5.3\mu\text{m}$ 附近强谱线处, 且此波段有较强的光吸收同位素效应。因此, 利

* 中国国家自然科学基金资助。

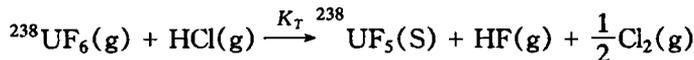
用 $5.3\mu\text{m}$ 左右的 CO 激光可以选择性地优先将 $^{235}\text{UF}_6$ 分子激光发到 $3\nu_3$ 态,



然后与反应物,如 HCl 反应,其反应速率设为 K_L ,



未受激的 $^{238}\text{UF}_6$ 分子与反应物只发生热化学反应,其速率为 K_T ,



根据 Arrhenius 速率方程可推出 $K_L/K_T = \exp(\alpha h\nu_L)$ 。其中, α 为校正系数,一般 $0 < \alpha < 1$ 。由此可见,激光可以加速振动受激分子的反应速率。经过一定时间的反应后,由 UF_5 固体产物中将获得浓缩的 ^{235}U 。实际过程中,同时存在着许多其他能量转移过程,对受激分子的光化学反应同位素选择性将产生不同的影响。

由以上分析可见,CRISLA 方法中的光子仅起催化反应的作用,而引起此化学反应所需的能量则由反应本身释放的能量供给。与在分子法(MOLIS)和原子法(AVLIS)中分子的离解或原子的电离完全由激光光子能量供给完全不同。因此,CRISLA 方法具有以下几个优点:(1)它是目前最经济的铀浓缩方法。(2)生产成本与生产规模基本无关。(3)便于分离低浓铀。正是由于这些优点,因此除美国和加拿大之外,英国、日本和德国等国家也对此方法产生较大兴趣。可见这方面的研究具有极高的商业保密性,很难获得有价值的详细文献。因而我国对此方法的可行性研究就变得更有意义了。

经过数年来的大量理论与实验研究,我们测量了 UF_6 分子 $3\nu_3$ 振动吸收光谱,取得了十分重要的光谱和吸收截面参数,从而找到了具有较强同位素选择性的激光波长。设计了可控温内腔式化学反应池,实现了 UF_6 与 HCl 的 CO 激光腔内活化化学反应,通过对反应池中固体产物的质谱分析,证实了 CRISLA 方法的可行性。

二、实验装置

激光活化化学反应同位素分离装置示意图如附图所示。图中激光器为纵向快速循环流动选频 CW CO 激光器^[5-7],这是一种具有新型结构的选频 CO 激光器,调频由微机控制光栅旋转实现,波段为 $4.8\sim 8\mu\text{m}$,强线功率可达 8W。激光腔由四根锈钢棒支撑,具有良好的结构稳定性。激光腔反射镜曲率半径为 $R = 5\text{m}$,腔光栅为 300line/mm。整个激光腔安置在一个防震平台上。

CO 激光功率与波长分别由功率计和单色仪监测,在实验过程中对这两个参量进行实时控制,以保证其稳定不变。

由附图可见,化学反应池处于激光腔内,这样可以获得较强的激光辐照,提高同位素选择活化化学反应所用激光的效率。反应池窗片采用 CaF_2 晶体,并与激光方向成布儒斯特角。气态反应物质 UF_6 与 HCl 由专门的标准不锈钢配气系统提供。另外,反应池外壳有一个保温

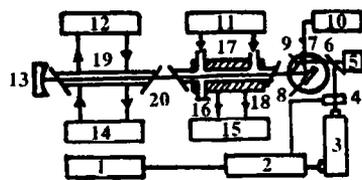


Fig. Schematic diagram of the device of chemical reaction isotope separation by laser activation
1 - recorder 2 - look-in amplifier 3 - monochrometer 4 - chopper 5 - power meter 6 - beam splitter 7 - rotation stage of the grating 8 - blazed grating 9 - output mirror 10 - computer 11 - gas make up system of the reactor 12 - power source of the laser 13 - cavity reflector 14 - gas make up system of the laser 15 - freon refrigerator 16 - observation window 17 - reactor 18 - temperature control jacket 19 - laser tube 20 - Brewster window

套,它与一台氟里昂制冷机相连,可以实现从室温至 -20°C 的反应池温度控制。

三、实验结果

1. 吸收光谱及吸收截面

采用我们研制的温度可调高灵敏度光声光谱系统,光声池位于附图中反应池位置,测定了298K与250K温度下 $^{238}\text{UF}_6$ 与 $^{235}\text{UF}_6$ 的 $3\nu_3$ 吸收光谱与吸收截面。我们发现在250K温度时,个别CO激光谱线的 UF_6 同位素吸收截面比可以相差10倍以上^[8]。这为我们选择化学反应激活激光波长及反应温度提供了可靠依据。

2. 化学反应

由于反应池放置在激光腔内,因此一方面使激光腔一定程度上加长,衍射损失增加,另一方面反应池光通量孔径使激光束通道有一定限制。另外,为了摸索化学反应规律,我们希望CO激光器能较长时间地稳定运行。因此,我们使CO激光器工作在慢速流动状态,对于选定的激光波长,激光腔外功率约在100mW左右。设腔反射镜反射率为100%,光栅输出耦合率为5%,则腔内激光功率为腔外功率的近40倍。当然,考虑到衍射及其他吸收损失,腔内功率大致为腔外功率的20~30倍左右。

为减少多种能量转移过程对 $3\nu_3$ 激活的 $^{235}\text{UF}_6$ 分子的消激活作用,反应气体HCl同时充当缓冲气体的角色,因此HCl的混合分压强应高于 UF_6 。根据我们前面测得的吸收截面值,此反应应控制在分钟量级。有文献报导此反应需数小时。因此我们首先采用半小时反应时间,反应池温度为273K。反应过程中发现激光功率不断下降,在反应池近光栅窗片上出现一块椭圆形乳白色斑,其长轴约1cm,这是 UF_5 固体。由于此窗片处在近光腰处,故此处光密度较大,因此产物应为光反应结果。调节反应池位置,使光轴避开窗片上的结晶斑,采用296K池温,反应时间控制在3min左右,重复9次。观察到窗片上渐渐出现结晶致使激光功率下降的现象,且仍然是近光栅窗片结晶更多。

3. 质谱分析

将反应池中的 UF_5 结晶送到核工业部北京地质研究院进行质谱分析,发现激光作用强的区域 $^{235}\text{U}/^{238}\text{U}$ 为0.7384%,激光作用弱的区域 $^{235}\text{U}/^{238}\text{U}$ 为0.7264%。而供入反应池的 $^{235}\text{U}/^{238}\text{U}$ 为0.6930%。因此,实验表明浓缩点与供料点的分离系数 α ,在激光作用强的区域为0.7384/0.6930,在激光作用弱的区域为0.7264/0.6930。

四、讨 论

由理论分析不难得出,适当缩短反应时间可以较多的提高浓缩比,即浓缩比是随反应时间增加而减小的。因此反应池可设计为流动式的,即反应物连续不断地流过反应池。

为充分利用激光能量,反应池可放在腔外,采用多次反射长程吸收的方法,并注意提高光束在池中的占空比。改进窗口结构,防止窗片污染,采用专门的 UF_5 产物收集装置。

另外,合适的反应剂对有效地同位素化学反应分离亦很重要。反应剂有多种选择,如:HCl, H_2 , CCl_4 , SiF_4 等等。还可加入适量的惰性缓冲气体。除此之外,适当的反应温度对分离效果亦有一定影响。

若能控制好以上诸因素,应能得到更高的浓缩比。

激光熔覆陶瓷涂层与金属基体之间的界面特性

周香林 李秀真 杨士浩

(山东工业大学材料系, 济南, 250014)

胡汉起

(北京科技大学冶金系, 北京, 100081)

摘要: 本文综述了激光熔覆陶瓷涂层与金属基体之间界面结构及性能方面的研究情况, 提出了提高界面结合强度的措施, 同时展望了激光熔覆陶瓷技术的应用前景。

关键词: 激光熔覆陶瓷涂层 润湿性 界面结构 结合强度

Properties of interface between laser cladding ceramic layer and metal matrix

Zhou Xianglin, Li Xiuzhen, Yang Shihao

(Dept. of Materials Engineering, Shandong University of Technology)

Hu Hanqi

(Dept. of Metallurgy Engineering, Beijing University of Science and Technology)

Abstract: Study on structure and function of interface between laser cladding ceramic layer and metal matrix was reviewed. Measures for improving binding strength of the interface were put forward. Application on the technology of laser cladding ceramic was prospected.

Key words: laser cladding ceramic layer wettability interface structure binding strength

本工作多方面合作工程, 在实验过程中得到清华大学现代应用物理系王建纬, 化学系赵福群, 工程物理系聂玉光、颜永福等同志的大力协助, 在此一并表示衷心感谢。

参 考 文 献

- 1 Eerkens J W. *Appl Phys.* 1976;10(1):15
- 2 Eerkens J W. US Patent No.4082633, 1978, Apr. 4
- 3 Eerkens J W. Australia Patent Abridgment, AUB-66607/81, 1981
- 4 Eerkens J W, Griot R P *et al.* Conference on lasers and electro-optics. San Francisco, California, 1986 June
- 5 袁庆华, 张 健, 王建纬 *et al.* 激光与红外, 1991;21(1):42
- 6 张 健, 吴念乐, 王建纬 *et al.* 中国激光, 1993;20(7):536~538
- 7 Zhang J, Wu N, Wang J *et al.*, *Opt & Laser Technol*, 1994;26(2):83
- 8 袁庆华. 博士学位论文. 清华大学现代应用物理系, 1990



作者简介: 张 健, 男, 1964年3月29日出生。博士, 讲师。现主要从事激光及其应用(尤其是半导体激光泵浦固体激光)的科研和教学工作。

收稿日期: 1994-10-05 收到修改稿日期: 1995-08-27