

# 铀原子的光电流光谱

金 巨 广

(中国科学院长春应用化学研究所)

近年来,应用激光技术光化学分离铀同位素已成为学术界瞩目的课题。激光分离铀同位素需要有关铀原子光谱的完整数据。为了提供铀同位素光谱间重叠小的锐的吸收谱线,提高原子法激光分离铀同位素的分离效率,必需研究有关铀原子光谱的同位素位移,同位素谱线强度比,超精细结构,激发态寿命,吸收截面和电离截面等许多光谱参数。这是确定分离方案的重要依据。但是,由于铀的高温腐蚀性,放射性,及光谱的复杂性,给铀原子光谱研究带来很大困难。现有的光谱数据多半还是最初用经典光学的方法,如发射光谱,吸收光谱和荧光光谱法测量的<sup>[1-5]</sup>,远不能满足对分辨率和灵敏度的要求。近年来出现的激光光谱技术,如饱和吸收光谱,双光子光谱,双共振光谱和本文介绍的光电流光谱<sup>[6]</sup>等,为研究铀原子的高激发态光谱开辟了新途径。特别是其中的光电流光谱法把铀原子蒸气的发生和光谱测量结合在一起,简化了实验装置,为研究铀原子光谱提供了一个较为理想的方法。下面将就光电流光谱的特点及其在铀原子光谱学研究上的应用作一简要的介绍。

## 一、空心阴极放电蒸气源

在介绍光电流光谱之前,需先介绍一下研究铀原子光谱必需研究的产生铀原子蒸气的方法。为了产

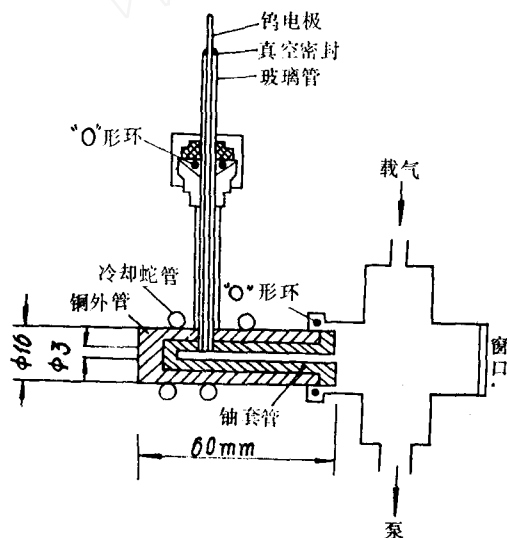


图 1 空心阴极放电蒸气源装置

生基态的铀原子蒸气,1975年以前多采用直热式钨炉或电子枪加热的铀原子束装置<sup>[7]</sup>。设备复杂昂贵,而且铀的腐蚀严重。后来提出的射频感应加热炉<sup>[8]</sup>,在钨管中发生铀原子蒸气,简化了实验装置,然而仍不能避免铀的高温腐蚀。采用空心阴极放电蒸气源<sup>[9]</sup>,利用放电载气离子( $\text{Ar}^+$ 或 $\text{Ne}^+$ )的阴极溅射作用使铀气化。气化速度可用放电电流控制,并且避免了铀的高温腐蚀影响。使空心阴极放电这种已应用多年的光谱光源,在光电流光谱出现后,获得了新的重要应用,并成为目前测量铀原子高激发态光谱的一个较理想的光源。

图 1 给出了利用空心阴极放电产生铀原子蒸气的装置<sup>[10]</sup>。空心阴极内经 3.6 mm,孔深 8.6 mm,放电载气氖气压 $\sim 7$ 托<sup>[15]</sup>。空心阴极放电电源为直流稳流电源,最高输出直流电压 1000 V。放电电流 15—70 mA,视要求而定。放电管内阻 13.8 k $\Omega$ 。为了使放电

稳定,在放电管与电源之间串联一个尽可能大的镇流电阻。空心阴极放电的点火电压一般为 600 V,工作电压为 300 V 左右。

## 二、光电流光谱及其特点

1976年美国国家标准局 R. B. Green 等<sup>[11]</sup>和 W. B. Bridges<sup>[12]</sup>用可调谐染料激光辐照放电管,研究光电流效应,观察到元素的很多分立谱线。发现这些谱线具有荧光光谱的特征,背景和散射光的影响

都非常小。后来又发表了一系列论文论证光电流效应在激光光谱学，计量学和分析化学上有广泛的应用。目前已发展成为一门新的光电流光谱学技术。

光电流光谱的特点在于它避免了常规光谱仪器的光路系统，不需要光学检测元件，把光学测量转变为电学测量。可以避免那些与弱的信号有关的因素的影响。光电流信号的背景噪音主要取决于电学噪音，来源于光学的噪音不产生影响。因此光电流光谱的背景小，信噪比大，灵敏度高。光电流光谱的波段范围也很宽，在紫外、可见光、红外直到微波射频这样广泛的波段范围上都有光电流效应。这对于扩展应用波段，特别是对目前尚无检测手段的波段就更有用。此外光电流光谱的测试装置也比较简单，它只需最少的光学元件和通常的信号测量放大系统。光电流光谱的不足处在于它仍受放电对谱线的多普勒加宽的限制，除内调制法<sup>[25,26]</sup>和饱和吸收法<sup>[20]</sup>外，一般不能获得无多普勒光谱。此外光电流光谱的灵敏度仍受信号的放大测量系统的电学噪音的限制；对激光光源的要求也较高，要求激光器应有足够窄的压缩线宽，足够稳定的强度和频率稳定性等。

图2给出了一个典型的空心阴极放电光电流光谱装置<sup>[13]</sup>。激光光源用氩离子泵浦的若丹明6G连续波可调谐染料激光。激光输出用切光器调制，调制频率在2kHz之内均可。激光线宽大约为0.01 Å 视要求而定，单谱线输出功率大约为10mW。用透镜把激光束轴向地聚焦在空心阴极放电管的阴极孔中。激光感生的光电流信号经耦合电容C由阳极引出，阴极接地。引出的信号送入锁定放大器中放大并记录。调谐激光在大范围扫描，用马达驱动双折射滤光片作波长的粗调，用法珀标准具进行波长的精细扫描。

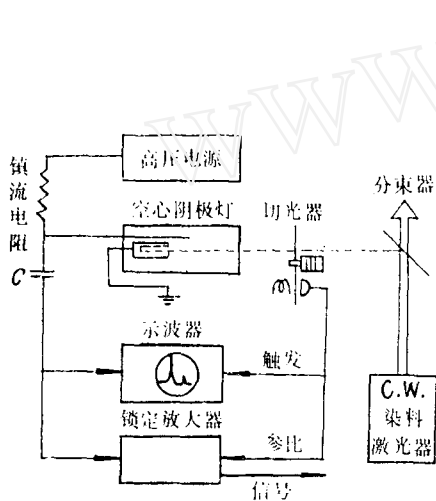


图2 光电流光谱装置

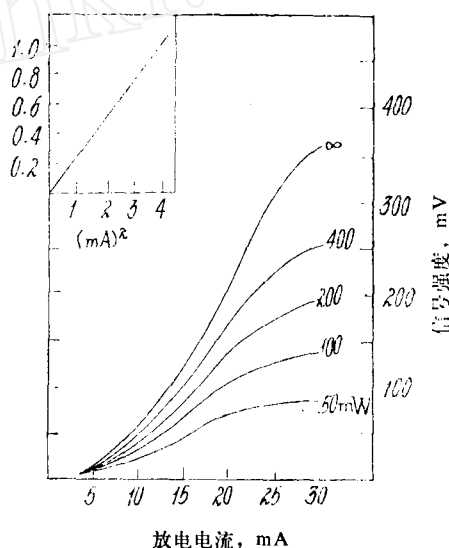


图3 激光功率和放电电流对光电流信号的影响

影响光电流信号的主要因素为：空心阴极放电的电流，载气种类，气压和激光的功率。放电载气一般用惰性气体氦、氖和氩。最强的铀信号是氩产生的，这是因为氩的原子量最大，溅射能力最强。载气气压一般为氦2托，氖4托，氩2托。考虑到放电的消耗，通常实用值略高，如可产生最强光电流信号的氩气压实际用4托<sup>[10]</sup>。

图3给出了空心阴极放电电流和激光功率对铀5915Å 跃迁光电流信号的影响关系<sup>[14]</sup>。在放电电流较小的情况下，信号与电流的平方成正比。在大电流的情况下，信号出现饱和。增加激光功率也会引起信号的饱和，一般应控制激光功率在150 mW 以下。这种信号饱和现象可能是铀原子蒸气密度饱和引起的。

### 三、铀原子的光电流光谱

铀原子的光电流光谱学研究进展较快<sup>[10,12,14-17]</sup>。因为光电流光谱法的信噪比大，检出下限低，对贫

铀样品也很容易测得<sup>238</sup>U和<sup>235</sup>U的位移光谱。并可测出<sup>235</sup>U的超精细结构光谱，分析同位素谱线强度比和测量铀基态原子的浓度。此外还可用光电流光谱法测量铀原子光谱的振子强度*f*和放电的电子温度等。

图4给出了U-Ar空心阴极放电管在若丹明6G波段范围内的光电流光谱图<sup>[12]</sup>。放电电流在7mA以下主要是Ar的谱线，溅射出的铀原子很少。放电电流增加到20mA，铀的谱线明显增多。激光线宽为

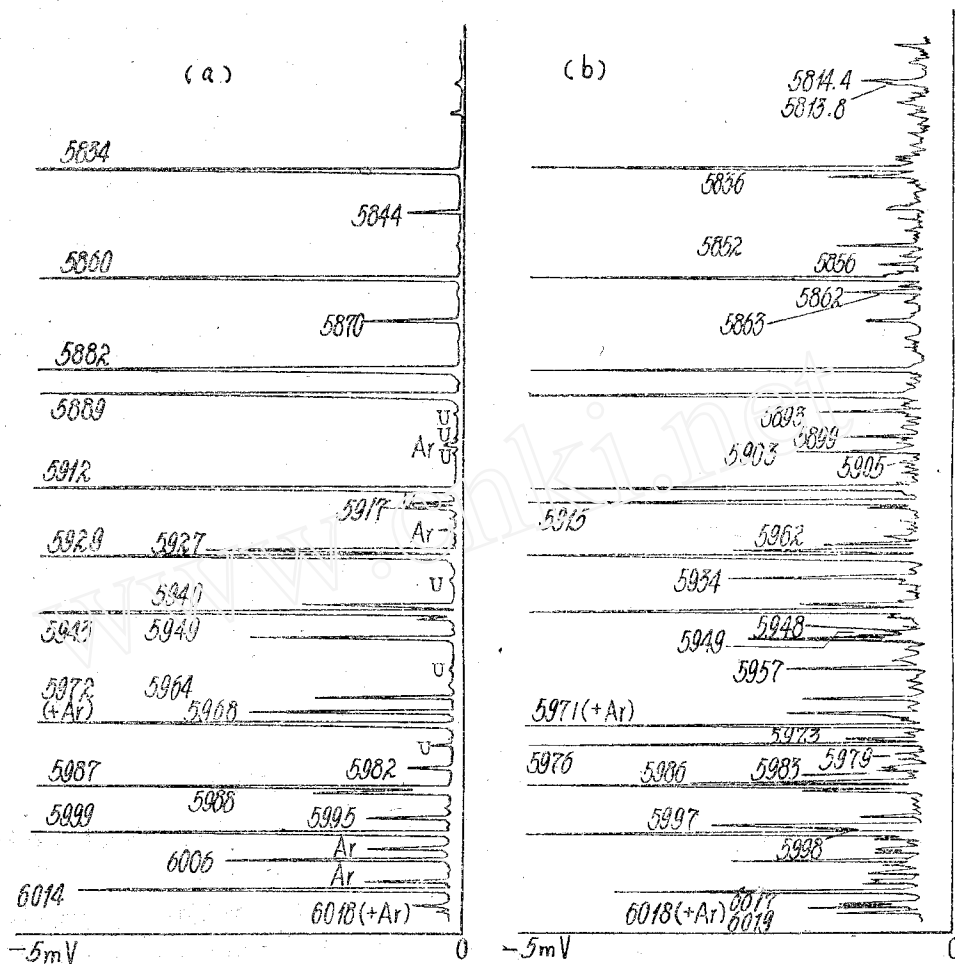


图4 U-Ar空心阴极放电的光电流光谱图  
 (a) 放电电流7mA，主要是Ar谱线；(b) 放电电流20mA，除Ar谱线外，又出现许多铀谱线。  
 图(a)中(+Ar)应为+U；(b)中谱线5962应为5925(校后注)。

0.5 Å以下扫描出的铀谱线可多达100条以上。这些铀谱线都是从低位奇宇称能级产生的。因为空心阴极放电溅射产生的铀原子浓度低，偶宇称能级的寿命小，产生的谱线强度弱。所以一般光电流光谱法检测不出高位偶宇称能级的跃迁。

表1中列出了U-Ne空心阴极放电管铀原子光电流光谱的波长和强度<sup>[14]</sup>。谱线强度用放电阻抗改变值表示。在572—672nm波段范围内，激光感生的光电流光谱可分为两类：一类是Ne的1s能级的跃迁。其信号为正或为负依具体的能级而定，信号的大小与光泵能级的倒空机率成正比。另一类是Ne的其他跃迁和铀的全部跃迁，信号全为负值。信号的大小与激光的吸收机率成正比<sup>[15]</sup>。

图5给出了铀原子光谱5915 Å附近的<sup>238</sup>U和<sup>235</sup>U的高分辨光电流光谱图<sup>[14]</sup>。从图上可以清晰地分辨开<sup>238</sup>U和<sup>235</sup>U的同位素位移，并可辨认出<sup>235</sup>U 5915.3 Å跃迁的超精细结构。由于所用样品为贫铀(含

表 1 铀原子光电流光谱强度

波 长, Å	强 度, (阻抗改变)	波 长, Å	强 度, (阻抗改变)	波 长, Å	强 度, (阻抗改变)	波 长, Å	强 度, (阻抗改变)
5813.83	0.40	5942.77	0.39	6016.73	0.59	6077.29	3.75
5814.41	0.58	5948.57	0.48	6017.57	0.45	6089.19	0.56
5819.01	0.24	5956.86	0.82	6019.19	0.59	6127.77	0.21
5836.03	0.50	5971.50	4.11	6039.60	0.30	6129.72	*2.02
5898.78	0.64	5976.32	4.11	6050.48	0.44	5915.40	*14.8
5915.40	14.9	5986.10	2.13	6050.67	0.74	5863.40	*0.38
5925.47	0.51	5997.31	0.72	6056.80	1.62	5891.36	*0.15
5929.33	0.63	5997.96	0.80	6057.07	0.35	6051.34	0.09
5933.82	1.56	5999.41	1.01	6062.30	0.97	6010.86	0.33

\* 放电电流为 20 mA, 其余均为 25 mA。

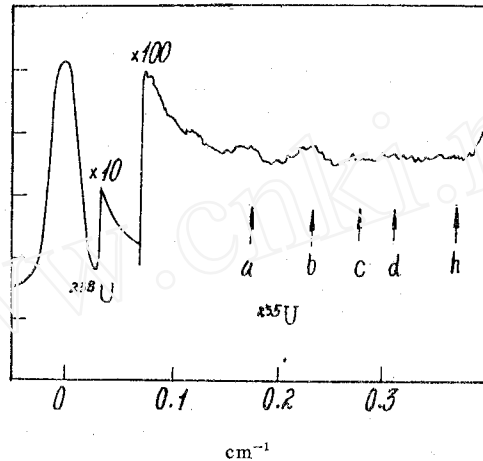


图 5 铀原子 5915 Å 跃迁的同位素位移和<sup>235</sup>U 5915 Å 跃迁的超精细结构

<sup>235</sup>U~0.3%)，所以相应谱线较弱。如果增加<sup>235</sup>U 的含量或提高放电电流，那么<sup>235</sup>U 的超精细结构的信噪比将会相应增加。

测定同位素比一般要求谱线的超精细分裂越小越好，应具有较清晰的光谱范围和足够的谱线强度。尽管<sup>235</sup>U 5915.3Å 谱线的强度最大，但因超精细结构较宽，其同位素谱线强度比仍不够大。在若丹明 6 G 的波段范围内，一般以 5933 Å 跃迁的同位素谱线强度比最好。

R. A. Keller 等<sup>[14]</sup>用光电流光谱法，在激光功率 50mW，放电电流 20mA 的情况下，测量了空心阴极放电中铀的基态原子的浓度。为此首先测得铀原子的吸光度  $D=0.17$ ，吸收光程  $l=2\text{cm}$ ，振子强度  $f=0.02$ ，自由光谱范围为 1 GHz。根据比尔定律和光学色散公式计算得到<sup>235</sup>U 基态原子的浓度为  $3 \times 10^9 \text{at/cm}^3$ 。此时信噪比为 5:1。考虑到<sup>235</sup>U 的强度分配在几个超精细组分中，<sup>238</sup>U 基态原子浓度的最低检出下限可望达到  $1 \times 10^8 \text{at/cm}^3$ 。

目前对铀原子超精细结构光谱的研究仍以 5915 Å 跃迁为最详细。根据过去用铀原子束吸收光谱测得的结果，已能精确测得<sup>238</sup>U 5915.3 Å 跃迁超精细结构的 8 个强组分和 7 个弱组分<sup>[15]</sup>。测得的谱线强度表明：<sup>238</sup>U 5915.4 Å 跃迁的强度与<sup>235</sup>U 5915.3 Å 跃迁的 15 个超精细组分强度的总和相等。

由于光电流光谱是门新兴的学科，研究铀的原子光谱只是其重要应用之一。最后还需指出，光电流光谱在国外已广泛应用于激光光谱学研究中，引起了各学科领域的重视。目前已应用于谱线的线宽和轮廓的测量<sup>[19,20]</sup>，用作谱线波长的高精度定标<sup>[17,21]</sup>，研究无多普勒加宽的饱和和吸收光谱<sup>[20]</sup>，无多普勒双光子光谱<sup>[22-24]</sup>无多普勒内调制光谱<sup>[25,26]</sup>，高激发态里德堡光谱<sup>[27]</sup>，双共振光谱<sup>[28,29]</sup>偶极子配对吸收光谱<sup>[30]</sup>，

红外波段<sup>[31-33]</sup>和射频波段<sup>[34,35]</sup>的光电流光谱等。光电流光谱技术在很短的时期内就获得了广泛的应用,以其独到的优点展示了它的广阔前景。

### 参 考 文 献

- [1] C. C. Kiess et al, *J. Res. Natl. Bur. Stand.*, **37**,57, (1946).
- [2] D. W. Steinhaus et al., LA-3475(1966).
- [3] D. W. Steinhaus et al., LA-4501(1971).
- [4] E. Miron, L. A. Levin et al., *Optics Comm.*, **18**,536(1976).
- [5] B. A. Palmer et al., LA-8251-ms,(1980).
- [6] 金巨广, *激光与光学*, **2**,20(1981).
- [7] R. Solarz et al., UCRL-76306(1975).
- [8] G. Erez et al., *Rev. Sci. Instrum*, **48**, 1482(1977).
- [9] E. Miron et al., *Appl. Phys. Lett.*, **35**, 737(1979).
- [10] E. Miron et al., *IEEE*, QE-15,194(1979).
- [11] R. B. Green et al., *Appl. Phys. Lett.*, **29**,727(1976).
- [12] W. B. Bridges, *J. Opt. Soc. Am.*, **68**,352(1978).
- [13] D. S. King et al., *Laser Focus*, **14**, 50(1978).
- [14] R. A. Keller et al., *J. Opt. Soc. Am.*, **69**, 738(1979).
- [15] E. F. Zalewski et al., *J. Chem. Phys.*, **70**, 1015(1979).
- [16] R. A. Keller et al., *Appl. Opt.*, **19**,3301(1980).
- [17] B. A. Palmer et al., *J. Opt. Soc. Am.*, **71**, 948(1981).
- [18] H.-D. V. Bohm et al., *Optics Comm.*, **26**, 177(1978).
- [19] 金巨广等, *激光*, **8**,54,(1981).
- [20] T. F. Johnston Jr., *Laser Focus*,**14**,58(1978).
- [21] 金巨广等, *激光*,**9**,657(1982).
- [22] J. E. M. Goldsmith et al., *Opt. Lett.*, **4**, 230(1979).
- [23] J. E. M. Goldsmith et al., *Optics Comm.*, **32**,403(1980).
- [24] H. Wakata et al., *Optics Comm.*, **38**,271(1981).
- [25] J. E. Lawler et al., *Phys. Rev. Lett.*, **42**,1046(1979).
- [26] T. W. Hansch et al., *Optics Comm.*, **38**,47(1981).
- [27] D. H. Katayama et al., *Chem. Phys. Lett.*, **62**, 542(1979).
- [28] C. R. Vidal, *Opt. Lett.*, **5**, 158(1980).
- [29] R. Shuker et al., *Optics Comm.*, **39**,51(1981).
- [30] J. C. White et al., *Opt. Lett.*, **5**, 120(1980).
- [31] D. J. Jackson et al., *Optics Comm.*, **33**, 51(1980).
- [32] D. J. Jackson et al., *J. Opt. Soc. Am.*, **70**,578(1980).
- [33] D. J. Jackson et al., *Optics Comm.*,**37**,23(1981).
- [34] D. R. Lyons et al., *Optics Comm.*, **33**,35(1981).
- [35] T. Suzuki, *Optics Comm.*, **38**, 364(1981).

(编辑部收到日期: 1982年5月26日)