

以 SiH_4 为介质扩散法生产 ^{28}Si 技术研究

孙 旺, 周明胜, 姜东君, 潘建雄
(清华大学, 北京 100084)

摘要: ^{28}Si 同位素主要应用于半导体领域, 在量子计算、计量学领域也有一定应用。采用 99% 以上丰度 ^{28}Si 制备硅晶体, 可以降低声子散射、提高热导率, 并且降低门电压、提高开关速度、提高芯片频率, 可用于制造高速 CPU、大功率器件、高性能传感器等。在室温下, 99.85% 以上丰度 ^{28}Si 半导体元件的热导率比天然丰度 Si 材料增加 10%~60%。高丰度 ^{28}Si 可用于制备量子信息长自旋相干时间器件, 去除 ^{29}Si 干扰。本研究采用气体扩散法, 以 SiH_4 为介质, 开展 ^{28}Si 同位素的分离研究。目前廉价优质的高分子有机膜已得到大规模工业应用。用于负压条件下的高速磁悬浮压缩机可以有效压缩 SiH_4 气体。通过 4 级扩散级联实验测得 SiH_4 的基本全分离系数可达 1.010。采用多元分离理论进行级联分析计算, 以天然 SiH_4 为原料, 通过一次不超过 300 级的相对丰度匹配级联, 可将轻馏分中的 ^{28}Si 同位素丰度浓缩到 99% 以上。本研究验证了以 SiH_4 为介质扩散分离 ^{28}Si 同位素可行。

关键词: 硅同位素; 甲硅烷; 气体扩散法; 基本全分离系数

中图分类号: TL92 文献标志码: A 文章编号: 1000-7512(2024)03-0203-08

doi: 10.7538/tws.2024.37.03.0203

Research on the Production of ^{28}Si Isotope with SiH_4 by Gas Diffusion Method

SUN Wang, ZHOU Mingsheng, JIANG Dongjun, PAN Jianxiong
(Tsinghua University, Beijing 100084, China)

Abstract: Stable isotopes are currently widely used in medical, biological, agricultural, environmental, industrial manufacturing, scientific research and other fields. There are three isotopes of silicon in nature, namely ^{28}Si , ^{29}Si , and ^{30}Si , with natural abundances of 92.22%, 4.69%, and 3.09%, respectively. ^{28}Si isotopes are mainly used in the semiconductor field and also have certain applications in quantum computing and metrology. Silicon crystals made from pure ^{28}Si isotope with an abundance of over 99% have a perfect lattice structure, which can reduce phonon scattering, improve thermal conductivity, lower gate voltage, increase switching speed, and increase chip frequency. ^{28}Si can be used to manufacture high-speed CPUs, high-power devices, high-performance sensors, and more. Different experimental studies have shown that using ^{28}Si materials with an abundance of over 99.85% to prepare semiconductor components can increase their thermal conductivity by 10%-60% compared to Si materials of natural abundance at room temperature. High abundance ^{28}Si is a key material for preparing long spin coherent time devices in the field of quantum

information, which can remove interference from ^{29}Si . Silicon quantum bit is a promising quantum computing platform with advantages such as long coherence time, small device size, and compatibility with industrial manufacturing technology. In addition, ^{28}Si isotope can also be applied in metrology to define the exact values of the Avogadro constant and kilogram units. With SiH_4 as the medium, the separation of ^{28}Si isotope was studied by gas diffusion method in this paper. At present, research on the separation of silicon isotopes using cryogenic distillation methods (SiH_4 , SiCl_4 , or SiH_3CH_3 systems), gas centrifugation methods (SiF_4 or SiHCl_3), chemical exchange methods (systems of SiF_4 and different complexing agents), laser methods (Si_2F_6 , SiF_4), and electromagnetic methods (SiH_4) has achieved certain results both domestically and internationally. However, industrial production of silicon isotopes has not yet achieved breakthroughs. The cryogenic distillation method for silicon isotopes has a smaller separation coefficient, while the gas centrifugation method has a lower efficiency in separating light gases. The laser separation method has a low yield and high cost, and its economic viability for industrial production is poor. Nowadays, low-cost and high-quality polymer organic membranes have been widely applied in industry. A high-speed maglev compressor used under negative pressure conditions can effectively compress SiH_4 gas. Compared to other potential separation media, SiH_4 has a relatively small molecular weight and a relatively large gas diffusion separation coefficient. The overall separation factor of SiH_4 can reach 1.010 measured through a 4-stage diffusion cascade experiment. Using multicomponent separation theory for cascade analysis and calculation, with natural SiH_4 as raw material, the ^{28}Si isotope abundance in light fractions can be concentrated to over 99% through a matched abundance ratio cascade (MARC) of no more than 300 stages. This study verifies the feasibility of diffusion separation of ^{28}Si isotope with SiH_4 as the medium.

Key words: silicon isotopes; monosilane; gas diffusion method; overall separation factor

稳定同位素目前在医疗、生物、农业、环境、工业制造、科研等领域有较为广泛的应用。硅元素在自然界有3种同位素,分别是 ^{28}Si 、 ^{29}Si 和 ^{30}Si ,其天然丰度分别为92.22%、4.69%和3.09%。 ^{28}Si 同位素主要应用于半导体领域,在量子计算、计量学领域也有一定的应用。

使用99%以上丰度的 ^{28}Si 材料制备半导体元件,可以减少 ^{29}Si 和 ^{30}Si 造成的晶格缺陷,降低声子散射、提高热导率、降低电磁噪声干扰^[1-2];并且可以降低门电压、提高开关速度、提高芯片频率^[1-2],可用于制造高速CPU、大功率器件、高性能传感器等^[3-4]。Ruf、Kremer等研究表明,在室温下,采用99.85%以上丰度 ^{28}Si 材料制备的半导体元件的热导率比天然硅材料提高10%~60%^[5-7], ^{28}Si 纳米线热导率提升效果更为显著(150%)^[8]。 ^{28}Si 同位素的核自旋为0,高丰度 ^{28}Si 可用于制备量子信息设备中长自旋相干时间关键材料,大幅降低 ^{29}Si 的干扰^[9-11]。使

用同位素纯的 ^{28}Si 材料制备单晶球体,可以测量更精确的阿伏伽德罗常数^[12-13]。

在实际应用中,对于 ^{28}Si 同位素材料的丰度要求很高,通常要求 ^{28}Si 同位素的丰度高于99%^[12],有时甚至要求大于99.7%;而 ^{28}Si 同位素的天然丰度为92.22%。目前国内外使用低温精馏法(SiH_4 、 SiCl_4 或 SiH_3CH_3 体系)^[14-15]、气体离心法(介质为 SiF_4 或 SiHCl_3)^[16]、化学交换法(SiF_4 与不同络合剂的分离体系)^[17]、激光法(Si_2F_6 、 SiF_4)^[18]、电磁法(SiH_4)^[19]分离硅同位素的研究取得了一定的成果,但是硅同位素的工业化生产研究尚未实现突破。硅同位素的低温精馏法分离系数较小,气体离心法分离轻气体的效率较低,激光分离法产量很低、成本较高,用于工业化生产的经济性均不佳。

目前廉价优质的高分子有机膜已得到大规模工业应用;清华大学工物系技术物理所团队研发出能有效压缩轻气体的用于负压条件下

的高速磁悬浮压缩机^[20],并且以压缩机、分离器为基础构建四级扩散级联。前期技术物理所团队以二氧化碳、乙醇为介质,通过单级实验验证了气体扩散法分离¹³C同位素的可行性^[21]。通过文献调研,目前尚未找到国内外有以SiH₄为介质扩散分离²⁸Si同位素的相关实验研究。相比其他潜在的分离介质,SiH₄的相对分子质量小,气体扩散分离系数相对大。本研究在单台压缩机装置及4级扩散级联实验平台上开展实验,获得流体压缩性能参数,测量气体扩散法分离SiH₄的基本全分离系数,并进行级联计算,探究以SiH₄为介质分离²⁸Si同位素的可行性。

1 扩散分离介质

对于硅同位素分离,综合考虑相对分子质量、气体物化性质、原料可获取性等条件,选取甲硅烷(SiH₄)作为气体扩散分离介质,SiH₄气体的主要性质参列于表1。SiH₄是一种无色、有刺激性气味、易燃的气体,沸点为-112℃,熔点为-185℃,平均相对分子质量约为32。SiH₄是合成有机硅化合物的重要原料;电子级SiH₄是半导体制造过程中的重要原料,可用于制造晶体管、集成电路、存储器等半导体器件。SiH₄热解生成晶体硅,是目前大规模生产粒状单晶

硅、多晶硅的方法之一,广泛应用于微电子、光电子工业。因此,以SiH₄为分离介质所得高丰度²⁸Si可直接用于单晶硅生产,无需化学转化。

需要注意的是,SiH₄是一种强还原性物质,与氧化性物质、碱会发生反应,接触氧气易燃,所以操作时需要保证压缩机、分离器及相关管路等真空密封性良好。

表1 SiH₄气体的主要性质参数
Table 1 The main physical parameters of SiH₄

物性表征量	参数
分子式	SiH ₄
外观	无色气体
标况气体密度/(g·L ⁻¹)	1.114
沸点/℃	-112
熔点/℃	-185
三相点/℃	-185
氧化还原性	强还原性
临界压力/kPa	4822
临界密度/(g·cm ⁻³)	0.247
燃烧范围	1.37%~96%
自燃温度/℃	-50

表2为SiH₄在不同温度下的饱和蒸汽压数据^[22]。SiH₄的熔点为-185℃,液氮的沸点为-196℃,SiH₄在-179.3℃的饱和蒸汽压为0.1 kPa,因此可以用液氮冷冻收集SiH₄。

表2 不同温度下SiH₄的饱和蒸汽压^[22]
Table 2 Saturated vapor pressure of monosilane (SiH₄) at different temperatures^[22]

饱和蒸汽压/kPa	0.1	0.7	1.3	2.7	5.3	8.0	13.3	26.7	53.3	101.3
温度/℃	-179.3	-168.6	-163.0	-156.9	-150.3	-146.3	-140.5	-131.6	-122.0	-111.5

²⁸Si、²⁹Si和³⁰Si的天然丰度分别为92.22%、4.69%和3.09%。氢元素有¹H和²H两种同位素,其天然丰度分别为99.985%和0.015%。通过计算得出天然SiH₄不同相对分子质量的分子组成和摩尔百分比,具体结果如表3所示。从表3可知,天然SiH₄中相对分子质量为32、33、34的组分占主要成分,其中²⁸Si¹H₄、²⁹Si¹H₄、³⁰Si¹H₄的占比为92.1876%、4.6679%、3.0986%。天然SiH₄中相对分子质量为35的组分含量低于0.01%,相对分子质量为36及以上的组分含量低于10⁻⁸,因此SiH₄的扩散分离过程可近似认为是三元分离问题。

表3 天然丰度SiH₄的分子组成
Table 3 Molecular components of natural monosilane (SiH₄)

相对分子质量	不同相对分子质量分子的摩尔百分比/%	分子组成	摩尔百分比/%
32	92.1876	²⁸ Si ¹ H ₄	92.1876
33	4.7103	²⁹ Si ¹ H ₄	4.6679
		²⁸ Si ¹ H ₃ ² H	0.0424
		³⁰ Si ¹ H ₄	3.0986
34	3.1007	²⁹ Si ¹ H ₃ ² H	0.0021
		²⁸ Si ¹ H ₂ ² H ₂	0.000007
		³⁰ Si ¹ H ₃ ² H	0.001426
35	0.0014	²⁹ Si ¹ H ₂ ² H ₂	3.7×10 ⁻⁷
		²⁸ Si ¹ H ² H ₃	5.6×10 ⁻¹⁰
36及以上	2.5×10 ⁻⁷		2.5×10 ⁻⁷

2 扩散分离实验平台

在本实验室的4级扩散级联平台(图1)上开展扩散分离实验,实验平台主体部分包括分离器、压缩机及其配套控制机箱、压力调节器;辅助设备包括供电系统(UPS电源、变频器)、冷却水系统、真空系统(真空泵)、数据采集与监控系统、测量仪表(真空计、测温计、流量计等)、管路阀门。4级扩散级联为双压缩机型,首尾两级涉及回流较为特殊,第1级和第2级有2台压缩机,第3级轻组分和第4级回流的轻组分汇合后连续经过2台压缩机压缩。

在4级扩散级联平台中,单个分离器由多

根有机多孔膜管并联构成,单分离器中气体过膜扩散原理示于图2。气体分子穿过多孔膜主要有分子流、粘性流两种形式。气体扩散法是利用分子流条件下,不同质量气体分子通过多孔膜的速度具有差异,产生分离效应;而粘性流无分离效应。因此,级联中流量、压强等工况应保证过膜气体绝大部分服从分子流规律。当气体平均自由程远大于膜孔径($\lambda \gg r$)、毛细管长度远大于半径($r \ll l$)时,气体过膜以分子流为主。在分子流条件下,理想浓化分离系数为重、轻分子的相对分子质量之比的平方根,即 $\alpha_0 = \sqrt{M_2/M_1}$ 。

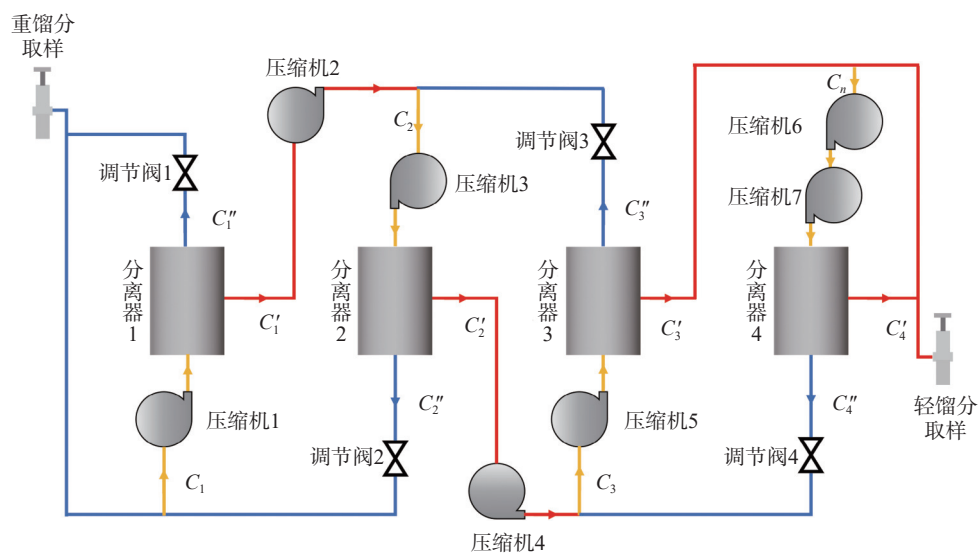


图1 4级扩散级联装置示意图

Fig.1 Schematic diagram of the 4-stage diffusion cascade

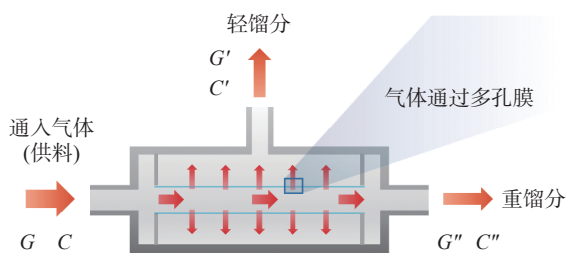


图2 单分离器中气体过膜扩散原理图

Fig.2 Schematic diagram of transmembrane gas diffusion in a single separator

3 单压缩机运行实验

由于 SiH_4 气体的特殊性,首次 SiH_4 通料实验在单台压缩机装置上进行,以验证 SiH_4 在高速磁悬浮压缩机设备上运转的安全可行性,并

初步测量压缩机压缩 SiH_4 的流体性能参数。以单台压缩机为核心搭建小型系统,包含真空计、测温计、管路阀门、真空泵等辅助设备。

对单压缩机系统抽真空,使用氮质谱仪检漏保证真空合格,充入一定量的 SiH_4 气体。启动压缩机,初步升速,观察测点温度、压缩机上下端轴轨轨迹、前后轴向位移、电流等参数是否正常,以及有无剐蹭异响。由于 SiH_4 的相对分子质量较小,因此为达到合适压比,目标转速设置为机器的额定转速,分次逐步升速至目标转速,循环运转一段时间。

压缩机到达额定转速后开始计时,到速后的前20 min内压缩机出口处气体温度上升较快,到速30 min后升温趋势放缓,温度渐趋稳定;而

压缩机的入口、出口压强一直较为稳定(图3)。机器运行40 min后, 压缩机出口温度为53℃(图4), 入口压强2.7 kPa、出口压强6.4 kPa, SiH_4 气体经过压缩机单次压缩后的压比为2.4(图5)。在压缩机运转过程中, 机器状态良好, 无异响, 温度、轴心轨迹、轴向位移、电流等参数正常。

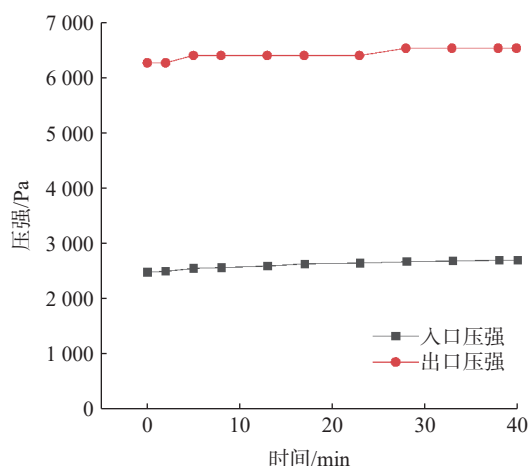


图3 单台压缩机入口、出口压强曲线

Fig.3 Inlet and outlet pressure curves of a single compressor

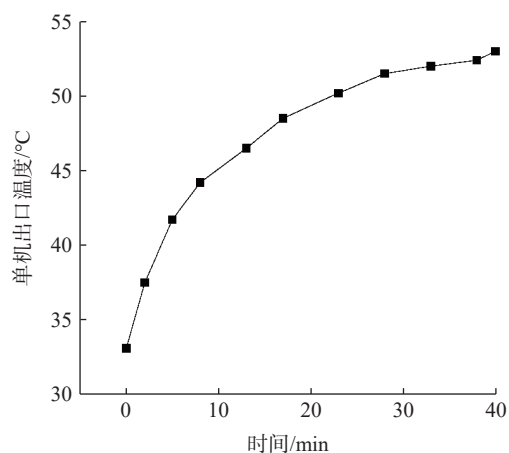


图4 单台压缩机出口温度曲线

Fig.4 Outlet temperature curve of a single compressor

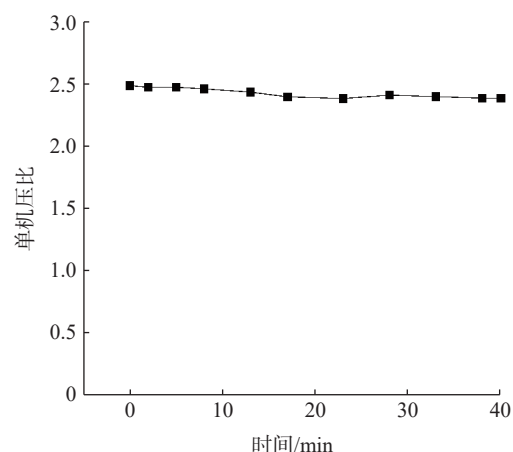


图5 单台压缩机压比曲线

Fig.5 Compression ratio curve of a single compressor

4 四级级联分离实验

安全完成单压缩机运行实验后, 继续在4级扩散级联上开展 SiH_4 扩散分离实验, 获得4级的流体性能参数, 并取样进行质谱丰度分析, 测量气体扩散法分离 SiH_4 的基本全分离系数。

4.1 实验方法

在实验中, 为保证分离效果, 需要调节四级工况均衡。启动压缩机后, 通过调节阀等调节流体参数, 应满足以下条件: (1)分离器1~4供料流量相同; (2)分离器1~4的分流比相同, 均为0.5; (3)分离器1~4的膜前压强、膜后压强相同。

在实验工况下, SiH_4 气体扩散分离实验运转3 h后, 达到平衡, 分别在精料端和贫料端取样。气体取样量远小于系统中气体滞留量, 4级扩散级联可认为是全回流扩散级联。

4级级联扩散分离 SiH_4 的流体测量结果列于表4。在膜前压强为5.6 kPa和8.4 kPa的工况下, 4级分离器的膜前后平均压比为5.2和5.3, 出口平均稳态温度为45.4℃、51.9℃。实验结果表明: (1)膜前压强越大, 单级供料流量和过膜流量越大; (2)在压缩机的有效工作区内, 4级的压比较为稳定, 压比随流量变化不显著;

表4 4级级联扩散分离 SiH_4 流体参数Table 4 Fluid parameters of diffusion separation of SiH_4 by the 4-stage cascade

平均膜前压强 /kPa	平均膜后压强 /kPa	平均膜前后 压比	单级供料流量 /(g·s ⁻¹)	全流量压缩机出口温度 /℃	半流量压缩机功率 /kW	全流量压缩机功率 /W
5.6	1.1	5.2	3.0	45.4	1.03	1.61
6.7	1.3	5.2	3.6	48.5	1.14	1.77
8.4	1.6	5.3	4.4	51.9	1.29	2.15

(3)流量越大,全流量压缩机的出口温度越高,压缩机功率越大;(4)运转1 h内,4级压缩机出口温度上升较快,1 h后趋于稳定(图6),稳态出口温度与压缩机电机、蜗壳的水冷情况有关。实验证明, SiH₄ 气体在4级扩散级联上运转安全可行,压缩机运行状态良好。SiH₄ 实验结束后,通过NaOH溶液解决 SiH₄ 尾气处理的问题,或者将剩余 SiH₄ 气体用液氮冷冻回收。

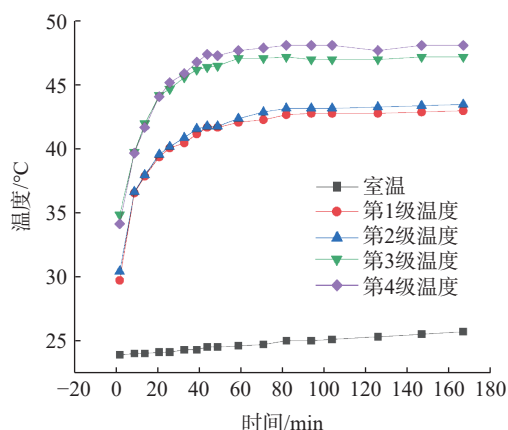


图6 4级级联扩散分离 SiH₄ 温度曲线

Fig.6 Temperature curve of diffusion separation of SiH₄ by the 4-stage cascade

4.2 质谱分析

由于扩散法分离轻稳定同位素的单级分离效应较为微弱,因此对于质谱分析精度要求较高,需要解决 SiH₄ 中硅同位素的质谱分析问题。若采用传统的 MAT253 稳定同位素质谱

仪,由于 SiH₄ 分子有4个氢原子, (SiH₃)⁺、(SiH₂)⁺、(SiH)⁺ 离子的存在造成干扰,难以保证测量精度。经调研后采用 Neptune plus 型多接收电感耦合等离子体质谱仪(ICP-MS)进行分析,将 SiH₄ 分子离子化,去除 Si 外侧所有氢原子,直接分析 (Si)⁺,精度较高。在4级实验中取样时,使用 NaOH 溶液与 SiH₄ 样品充分反应,将含 Na₂SiO₃ 的溶液样品送 ICP 质谱分析。并且在实验中,为了避免玻璃等物质中硅元素对同位素分析结果的影响,避免使用玻璃烧杯、玻璃搅拌棒;使用金属容器、PFA 储样瓶。使用去离子水、优级纯 NaOH,进一步排除干扰。为处理分析碱性硅样品,ICP 质谱仪专门改造为无硅体系,包括 PFA 雾化器和雾室、蓝宝石炬管等配件。

通过 ICP 质谱测得的精料、贫料中硅同位素的丰度计算 SiH₄ 的基本全分离系数。相比于单个分离级的微弱分离效应,4级扩散级联可以产生倍增效应,有助于进一步提高分析测量精度。4级级联膜前压强分别为 5.6、6.7、8.4 kPa 的3个工况下扩散分离效果列于表5。ICP 质谱丰度分析结果表明,以 SiH₄ 为介质,扩散法可以实现硅同位素的有效分离,分离效果较好。在膜前压强为 5.6、6.7、8.4 kPa 的工况下, SiH₄ 的单级基本全分离系数分别为 1.010、1.010、1.009,单级浓缩系数分别为 0.0051、0.0050 和 0.0045,扩散分离系数随膜前压强增大而减小,结果符合预期。

表5 4级级联扩散分离 SiH₄ 同位素丰度 ICP 质谱分析结果

Table 5 Isotope abundance results of SiH₄ by ICP-MS after diffusion separation by the 4-stage cascade

膜前压强 /kPa	样品 类型	²⁸ Si 丰度	²⁹ Si 丰度	³⁰ Si 丰度	4级轻组分浓化 分离系数α	4级重组分贫化 分离系数β	4级全分离 系数q	单级基本全分离 系数γ ₀	单级浓缩 系数ε
5.6	供料	92.21%	4.67%	3.11%	1.0218	1.0190	1.0412	1.010	0.0051
	精料	92.45%	4.59%	2.96%					
	贫料	92.06%	4.75%	3.19%					
6.7	精料	92.45%	4.58%	2.97%	1.0222	1.0177	1.0403	1.010	0.0050
	贫料	92.07%	4.75%	3.18%					
	供料	92.21%	4.67%	3.11%					
8.4	精料	92.40%	4.60%	3.01%	1.0179	1.0184	1.0366	1.009	0.0045
	贫料	92.04%	4.75%	3.21%					
	供料	92.21%	4.67%	3.11%					

5 扩散级联计算

5.1 基本全分离系数

使用相对丰度匹配级联(MARC)进行级联计算。采用多元分离理论,将 SiH₄ 的扩散分离过程看作三元分离问题。采用 Kai 提出的多元

分离理论^[23],基本全分离系数 γ₀ 的定义为单位摩尔质量的差对应的分离系数^[24]。

$$\gamma_{ij} = \gamma_0^{\Delta M_{ij}} \quad (1)$$

其中, $\Delta M_{ij} = M_j - M_i$, M_i 和 M_j 分别为 i 组分和

j 组分的相对分子质量。

对于轻组分 i 、重组分 j , 给出单级扩散分离系数和浓缩系数的定义, α 为轻组分单级浓化分离系数, β 为重组分单级贫化分离系数, ε^+ 为轻组分单级浓缩系数, ε^- 为重组分单级浓缩系数:

$$\alpha = \varepsilon^+ + 1 = \frac{C_i^+/C_j^+}{C_i/C_j} \quad (2)$$

$$\beta = \varepsilon^- + 1 = \frac{C_i/C_j}{C_i^-/C_j^-} \quad (3)$$

q 为单级全分离系数:

$$q = \alpha\beta \quad (4)$$

在对称分离下, 每一级分离器的轻组分和重组分单级浓缩系数均相等:

$$\varepsilon^+ = \varepsilon^- = \varepsilon = \alpha - 1 \quad (5)$$

根据4级扩散级联分离实验结果, 在膜前压强为5.6、6.7 kPa的工况下, 单级基本全分离系数可达1.010, 单级浓化分离系数可达1.005, 在级联设计中取基本全分离系数为1.010进行计算。

5.2 级联计算

气体扩散级联各级²⁸Si同位素丰度分布示于图7。以天然丰度的SiH₄为原料, 通过一个总级数为291级的MARC级联, 便可将轻馏分中的²⁸Si同位素丰度浓缩到99%以上。其中供料级位于距离重馏分端10级的位置, 气体扩散级联轻馏分流量为供料流量的0.0366倍, 气体扩散级联总流量为供料流量的2716倍, 重馏分中²⁸Si同位素丰度为91.96%。

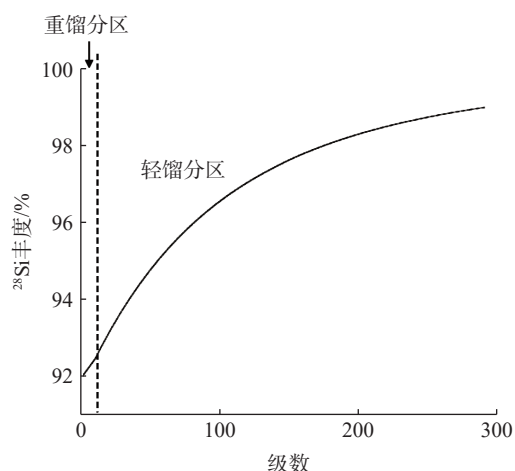


图7 气体扩散级联各级²⁸Si同位素丰度分布
Fig.7 Abundance distribution of ²⁸Si in the gaseous diffusion cascade

6 结论

本研究对气体扩散法分离²⁸Si同位素进行了初步探索, 验证了以SiH₄为介质分离²⁸Si同位素的可行性。在单台压缩机装置及4级扩散级联实验平台上开展实验, SiH₄气体在压缩机系统上可以安全运转, 获得流体压缩性能参数, 测量气体扩散法分离SiH₄的基本全分离系数, 并进行级联计算, 得到了以下结论。

(1)以SiH₄为工作介质, 可以实现²⁸Si同位素的扩散分离。

(2)开展4级扩散级联实验, 使用NaOH溶液与SiH₄样品充分反应, 通过Neptune plus型多接收电感耦合等离子体质谱仪(ICP-MS)分析含Na₂SiO₃的溶液样品, 经计算可以得到气体扩散法分离SiH₄的基本全分离系数。在膜前压强为5.6、6.7 kPa的工况下, 测量得到SiH₄的基本全分离系数可达1.010。

(3)以MARC级联进行计算, 以天然丰度的SiH₄为原料, 通过一个总级数不超过300级的MARC级联, 便可将轻馏分中的²⁸Si同位素丰度浓缩到99%以上。

气体扩散法分离²⁸Si同位素的分离系数较大、流量较大、成本较低, 具有工业化应用潜力, 且在重馏分端可以得到³⁰Si同位素副产品。用于负压条件下的高速磁悬浮压缩机能够有效压缩SiH₄气体。相比于其他潜在的Si同位素分离介质(如SiHCl₃), SiH₄的相对分子质量小、气体扩散分离系数相对大、Si元素质量占比高。气体扩散分离过程为物理分离过程, 不引入其他杂质, 制备出的高丰度²⁸Si同位素纯度较高。在实际生产级联设计中, 可以通过灵活调整气体扩散级联长度和流量来调整目标同位素丰度(如99.9%以上)。综上, 通过4级气体扩散级联上的初步实验证明, 以SiH₄为介质扩散分离²⁸Si同位素可行, 后续若有工业化规模生产需求需要考虑经济性。

参考文献:

- [1] 唐克, 刘娇, 邢锦娟. 硅同位素的应用及分离研究进展[J]. 渤海大学学报(自然科学版), 2016, 37(4): 341-345.
Tang Ke, Liu Jiao, Xing Jinjuan. Research progress in the application and separation of silicon isotopes[J]. Journal of Bohai University (Natural Science Edition), 2016,

- 37(4): 341-345(in Chinese).
- [2] 李文泊, 李大勇, 吴建军. ^{28}Si 同位素应用背景及分离研究现状概述[J]. 原子能科学技术, 2006, 40(9): 200-203.
Li Wenbo, Li Dayong, Wu Jianjun. Summarization about applied background ^{28}Si isotope and actuality in separating ^{28}Si [J]. Atomic Energy Science and Technology, 2006, 40(9): 200-203(in Chinese).
 - [3] MacDonald W. Engineering new semiconductor materials[J]. Chemical Engineering, 1998, 105(13): 39-41.
 - [4] Kizilyalli I C, Safar H, Herbsommer J, et al. Power transistors fabricated using isotopically purified silicon (^{28}Si)[J]. IEEE Electron Device Letters, 2005, 26(6): 404-406.
 - [5] Komarov P L, Burzo M G, Kaytaz G, et al. Transient thermo-reflectance measurements of the thermal conductivity and interface resistance of metallized natural and isotopically-pure silicon[J]. Microelectronics Journal, 2003, 34(12): 1115-1118.
 - [6] Ruf T, Henn R W, Asen-Palmer M, et al. Thermal conductivity of isotopically enriched silicon[J]. Solid State Communications, 2000, 115(5): 243-247.
 - [7] Kremer R K, Graf K, Cardona M, et al. Thermal conductivity of isotopically enriched ^{28}Si : revisited[J]. Solid State Communications, 2004, 131(8): 499-503.
 - [8] Ci P, Sun M, Upadhyaya M, et al. Giant isotope effect of thermal conductivity in silicon nanowires[J]. Physical Review Letters, 2022, 128(8): 085901.
 - [9] Steger M, Saeedi K, Thewalt M L W, et al. Quantum information storage for over 180 s using donor spins in a ^{28}Si “semiconductor vacuum” [J]. Science, 2012, 336(6086): 1280-1283.
 - [10] Muhonen J T, Dehollain J P, Laucht A, et al. Storing quantum information for 30 seconds in a nanoelectronic device[J]. Nature Nanotechnology, 2014, 9: 986-991.
 - [11] Sigillito A J, Loy J C, Zajac D M, et al. Site-selective quantum control in an isotopically enriched $^{28}\text{Si}/\text{Si}_{0.7}\text{Ge}_{0.3}$ quadruple quantum dot[J]. Physical Review Applied, 2019, 11(6): 061006.
 - [12] Becker P, Pohl H J, Riemann H, et al. Enrichment of silicon for a better kilogram[J]. Physica Status Solidi (a), 2010, 207(1): 49-66.
 - [13] Becker P, Bettin H. The Avogadro constant: determining the number of atoms in a single-crystal ^{28}Si sphere[J]. Philosophical Transactions Series A, Mathematical, Physical, and Engineering Sciences, 2011, 369(1953): 3925-3935.
 - [14] Mills T R. Silicon isotope separation by distillation of silicon tetrafluoride[J]. Separation Science and Technology, 1990, 25(3): 335-345.
 - [15] Devyatykh G G, Borisov G K, Pavlov A M. Separation of silicon isotopes by monosilane rectification[J]. Doklady Akad. Nauk S. S. S. R, 1961, 138(2): 402-407.
 - [16] 周明胜, 魏雄飞, 曾实. 以 SiHCl_3 为工作介质生产高丰度 ^{28}Si [J]. 清华大学学报(自然科学版), 2005, 45(12): 1640-1642.
Zhou Mingsheng, Wei Xiongfei, Zeng Shi. Production of highly enriched ^{28}Si using SiHCl_3 as the processing gas[J]. Journal of Tsinghua University (Science and Technology), 2005, 45(12): 1640-1642(in Chinese).
 - [17] Korolev V A, Mashirov L G, Perepech K V, et al. Separation of silicon isotopes by silicon tetrafluoride-silane technology[J]. Inorganic Materials, 2002, 38(6): 539-541.
 - [18] Lyman J L, Newnam B E, Noda T, et al. Enrichment of silicon isotopes with infrared free-electron laser radiation[J]. The Journal of Physical Chemistry A, 1999, 103(21): 4227-4232.
 - [19] Dwyer K J, Pomeroy J M, Simons D S, et al. Enriching ^{28}Si beyond 99.999 8% for semiconductor quantum computing[J]. Journal of Physics D: Applied Physics, 2014, 47(34): 345105.
 - [20] 周明胜, 裴根, 姜东君, 等. 用于负压条件下的高速磁悬浮压缩机: CN209510664U[P]. 2019-10-18.
 - [21] 李俊杰, 潘建雄, 周明胜, 等. 以二氧化碳为介质扩散分离碳同位素的可行性研究[J]. 同位素, 2022, 35(4): 348-355.
Li Junjie, Pan Jianxiong, Zhou Mingsheng, et al. Feasibility study on diffusion separation of carbon isotope using carbon dioxide as processing gas[J]. Journal of Isotopes, 2022, 35(4): 348-355(in Chinese).
 - [22] Don W G, Robert H P. Perry's chemical engineers' handbook[M]. New York: McGraw-Hill Education, 2007.
 - [23] Kai T. Theoretical analysis of ternary UF_6 gas isotope separation by centrifuge[J]. Journal of Nuclear Science and Technology, 1983, 20(6): 491-502.
 - [24] 郭志雄, 应纯同. 多组分同位素离心分离的简化计算[J]. 清华大学学报(自然科学版), 1995, 35(3): 71-77.
Guo Zhixiong, Ying Chuntong. Simplified calculation of centrifugal separation of multicomponent isotopes[J]. Journal of Tsinghua University (Science and Technology), 1995, 35(3): 71-77(in Chinese).