

Некоторые новые тенденции в лазерном разделении изотопов в атомарных парах*

П.А.Бохан¹, В.В.Бучанов², Д.Э.Закревский¹, М.А.Казарян³, М.М.Калугин⁴, **А.М.Прохоров⁵**, Н.В.Фатеев¹

Рассмотрены и реализованы новые подходы к методам лазерного разделения изотопов, позволившие существенно расширить их возможности. Для сужения линии поглощения и уменьшения паразитного поглощения на переходах в атомах изотопов, не принадлежащих к выделяемому продукту, использовался метод двухфотонного возбуждения (ДВ) атомов как в коллинеарных, так и во встречных пучках излучения. С использованием ДВ во встречных пучках проведено разделение весовых количеств изотопов Zn в условиях, когда изотопическая структура резонансного перехода полностью скрыта доплеровским уширением. Применение ДВ в коллинеарных пучках позволило провести экономичную очистку свинца от редкого изотопа ²¹⁰Pb и получить низкорadioактивный свинец. Проведено детальное компьютерное моделирование процессов разделения изотопов Zn, В, Pb и Si с использованием двухфотонного возбуждения. Предложен и реализован эффективный метод разделения изотопов с помощью химических реакций с селективно-возбужденными атомами в долгоживущих состояниях, выгодно отличающийся от традиционного метода фотоионизации.

Ключевые слова: лазерное разделение изотопов, двухфотонное возбуждение, фотохимия.

	Содержание
1. Введение	570
2. Лазерный комплекс для разделения изотопов	571
3. Когерентное изотопически-селективное двухфотонное возбуждение	572
3.1 Краткое описание двухфотонного возбуждения и его математическая модель	572
3.2 Двухфотонное возбуждение атомов свинца	573
3.3 Двухфотонное возбуждение атомов бора и кремния	574
4. Фотохимическое разделение изотопов цинка с использованием двухфотонного возбуждения	576
4.1 Описание метода	576
4.2 Поляризация излучения	577
4.3 Математическая модель каскадной суперлюминесценции	578
4.4 Результаты расчетов	579
4.5 Экспериментальные результаты	580
5. Фотохимическое разделение изотопов с использованием однофотонного возбуждения долгоживущих уровней	580
5.1 Описание экспериментальной методики	580
5.2 Математическая модель	581
5.3 Результаты расчетов по разделению изотопов цинка	583
5.4 Результаты экспериментов по разделению изотопов цинка	584
5.5 Разделение изотопов рудидия с помощью возбуждения ридберговских состояний	584
6. Выводы	585
Литература	585

*Основные результаты работы были представлены и обсуждены на семинаре Отдела колебаний ИОФ РАН под рук. А.М.Прохорова 19 ноября 2001 г.

¹Институт физики полупроводников СО РАН, Россия, 630090 Новосибирск, просп. Лаврентьева, 13

²НПО «Астрофизика», Россия, 123424 Москва, Волоколамское ш., 95

³Физический институт им. П.Н.Лебедева, Россия, 119991 Москва, Ленинский просп., 53

⁴Предприятие «Сканирующие лазеры», Россия, 188537 Сосновый бор Ленинградской обл., ул. Ленинградская, 16-29

⁵Институт общей физики им. А.М.Прохорова РАН, Россия, 119991 Москва, ул. Вавилова, 38

1. Введение

Сегодня можно утверждать, что изотопическая продукция и сверхчистые вещества играют все возрастающую роль в науке, технике, медицине. Поэтому неудивительно, что продолжают поиски новых способов разделения изотопов и быстро совершенствуются известные методы их получения.

Методы лазерного разделения изотопов и очистки веществ [1–3] в атомарных парах развиваются уже десятки лет [4–15]. Созданы действующие экспериментальные стенды (еще в 1975 г. с помощью установки на основе саморазогревного лазера на парах меди [16–18], накачивающего лазер на красителе, в Ливерморской Национальной лаборатории им. Лоуренса было произведено

весовое количество обогащенного урана с концентрацией ^{235}U около 3% [15, 19, 20]), опытно-промышленные и промышленные установки [21–33].

Наметившееся в последнее десятилетие качественное развитие лазерной техники, связанное с созданием эффективных и мощных перестраиваемых по частоте лазеров в видимой, УФ и ИК областях спектра [34–43], позволяет надеяться на технологический прорыв в работах по созданию промышленных установок для разделения изотопов. Немаловажным в этом случае становится вопрос об универсальности лазерного метода разделения различных изотопов и о возможности выделения желаемого элемента с большой степенью чистоты из природной руды, промышленного сплава или отходов.

В научной литературе сообщается об успешной реализации лазерного разделения изотопов урана, плутония, гадолиния, циркония, иттербия [13, 15, 22–25]. К странам, в которых интенсивно развивается это направление, относятся США, Франция, Япония. Можно утверждать, что там вплотную приблизились к освоению крупномасштабного производства изотопов [13–15]. В Великобритании, Индии, Китае, Республике Корея и некоторых других странах [15], включая Россию, также проявляется интерес к внедрению этой технологии [14, 15, 31, 44, 45].

В настоящей работе приведены результаты теоретических и экспериментальных исследований по лазерному разделению изотопов некоторых важных с научной и практической точек зрения элементов (Pb, Zn, Rb, B, Si), которые могут быть использованы в фундаментальных исследованиях, при создании квантовых компьютеров, в микроэлектронной, атомной и биомедицинской технологиях [32, 33, 44, 45].

С одной стороны, в настоящей работе выбор элементов диктовался потребностями науки и техники. В первую очередь это относится к свинцу и кремнию, широко используемым в микроэлектронике. С другой стороны, в определенных случаях этот выбор был обусловлен потенциальными возможностями современной лазерной техники [10, 11, 22–25, 38, 43, 46–49] и конкурентоспособностью лазерных методов в сравнении с другими, в первую очередь с методами центрифугирования и изотопного химического обмена.

Наибольшее внимание в настоящей работе уделяется физико-химическим аспектам разделения изотопов и в меньшей степени – развитию лазерной техники. Современный уровень мощности и эффективности лазеров на парах меди, лазеров на красителях, перестраиваемых лазеров на кристаллической основе и в особенности лазеров на $\text{Nd}^{3+}:\text{YAG}$ с диодной накачкой [50] позволяет построить экономически выгодные производства при условии эффективного использования излучения.

2. Лазерный комплекс для разделения изотопов

Лазерный комплекс для разделения изотопов [48, 49] (рис.1), позволяющий проводить широкие исследования по возбуждению паров различных веществ с использованием разных схем и условий возбуждения, представляет собой совокупность двух независимых лазерных каналов, каждый из которых излучает на своей длине волны.

Задающая система. Источником когерентного излучения, перестраиваемого по частоте, служат непрерыв-

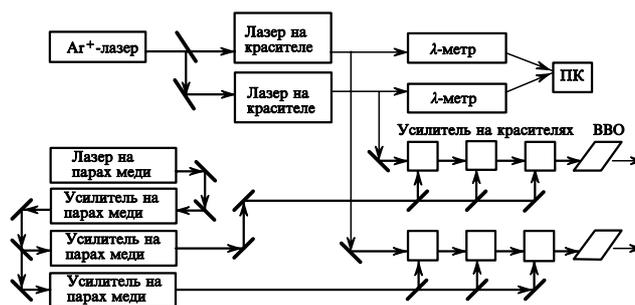


Рис.1. Оптическая блок-схема установки.

ные лазеры на растворах органических красителей (как правило, на родамине 6G) [51] с накачкой излучением непрерывного аргонового лазера с мощностью 10 Вт. Выходная мощность перестраиваемых лазеров (на длинах волн 607 и 615 нм) достигает 70 мВт.

Резонатор лазеров содержал три селективных элемента – трехкомпонентный двулучепреломляющий фильтр, эталон Фабри–Перо и пленку Троицкого. С помощью электронного блока управления обеспечивался одночастотный режим генерации. Спектр выходного излучения контролировался с помощью сканирующего интерферометра Фабри–Перо. Точные измерения ширины спектра (по спектру биения двух одинаковых лазеров) показали, что ширина линии излучения составляет менее 5 МГц при времени измерения несколько секунд, а дрейфовый уход частоты – несколько сот мегагерц в час. Контроль центральной частоты излучения каждого лазера осуществлялся с помощью λ -метра. Относительная погрешность измерения составляла 5×10^{-8} , но из-за несовершенства процедуры калибровки и вследствие температурного дрейфа (около 100 МГц/ч) абсолютная погрешность была равна 150 – 200 МГц.

Излучение от каждого из задающих лазеров усиливалось трехкаскадной импульсной усилительной системой на красителе, состоящей из кювет с поперечной накачкой излучением лазера на парах меди. Длина пути от задающих лазеров до предусилителей составляла ~ 10 м, что обеспечивало малое влияние спонтанного излучения усилителей на непрерывные лазеры.

Комплекс лазеров накачки. Основой комплекса лазеров накачки являлась система задающий генератор – усилитель мощности на основе газоразрядных лазеров на парах меди, которая состояла из задающего генератора (ЗГ), предварительного усилителя (ПУ) и двух оконечных усилительных каскадов (УК). Излучатели с водяным охлаждением были собраны в едином вертикальном модуле. В качестве активных элементов использовались промышленные отпаиваемые газоразрядные трубки на парах меди серии «KRISTALL» производства ГНПП «Исток» [43] (задающий генератор – LT-30Cu или ГЛ-201, усилители – LT-40Cu) с диаметрами разрядного канала 20 мм и длинами 930 и 1230 мм. Лазерное излучение с расходимостью, близкой к дифракционной, формировалось ЗГ с неустойчивым резонатором.

Возбуждение медных лазеров осуществлялось импульсными источниками питания, построенными по схеме с частичным разрядом накопительной емкости [49]. В качестве коммутаторов использовались генераторные лампы ГМИ-29А-1 (в нашем случае коммутируемый ток достигал 280 А, мощность – 5 кВт, а длительность импульса возбуждения была равна ~ 50 нс). Заряд накопительной

емкости осуществлялся от стабилизированного преобразователя напряжения, работающего с частотой преобразования 30 кГц и напряжением на выходе до 30 кВ.

Средняя мощность ЗГ достигала ~ 15 Вт при длительности импульса генерации 6–7 нс, что недостаточно для полного снятия инверсии в ПУ. Применение стретчера (удлинителя импульсов) позволило увеличить длительность импульса ЗГ до ~ 15 нс при средней мощности на входе ПУ порядка 6–7 Вт, при этом мощность с выхода ПУ возросла почти на 30%. При мощности на входе ПУ ~ 6 Вт выходная мощность составила ~ 55 Вт, а после двух каналов УК лазерного комплекса на парах меди суммарная выходная мощность излучения в дифракционном пучке была не менее ~ 150 Вт (по 75 Вт в каждом канале при частоте следования импульсов генерации 10–12 кГц и длительности импульса генерации ~ 18 –20 нс при средней мощности, отбираемой от выпрямителя, ~ 4.5 кВт). Поскольку длительность импульса генерации очень мала, то импульсы питания генератора и усилителя были синхронизованы с точностью лучше 0.5 нс и сдвинуты относительно друг друга на время прохождения света от генератора до усилителя.

Контроль параметров функционирования и управление режимами работы комплекса осуществляются с помощью компьютерной системы управления.

Импульсные усилители на красителях. Импульсные усилители на растворах красителей также представляют собой двухканальную систему, а каждый из каналов в свою очередь состоит из трех каскадов. Во всех усилительных каскадах раствором красителя служил феналемин-512 в этаноле, что позволило использовать обе линии излучения медного лазера с почти одинаковой эффективностью. Расстояние между стенками кювет в предусилителях было равно 0.5 мм, в оконечных усилителях – 1 мм, скорость прокачки красителя составляла 12 л/мин. Излучение накачки фокусировалось в кювету цилиндрической линзой, а затем возвращалось цилиндрическим зеркалом обратно. Концентрация красителя подбиралась такой, чтобы пропускание излучения накачки составляло 30% за проход. Это позволило добиться высокой ($\sim 90\%$) утилизации накачки и равномерного ее распределения.

Для подавления усиленного спонтанного излучения использовались дисперсионные призмы в сочетании со щелевой диафрагмой и линзовый телескоп с диафрагмой 0.2 мм в перетяжке, а также тщательно подбирались задержки между приходом импульса усиливаемого излучения и импульсом накачки. Оптимальная задержка составляла ~ 1 –2 нс. Оптимальный коэффициент усиления первого предусилителя был равен 10^4 , что обеспечивало получение на выходе мощности излучения ~ 50 мВт при мощности накачки 10 Вт. После второго предусилителя мощность достигала ~ 450 мВт при накачке 12 Вт. За оконечным каскадом выходная мощность составляла 12 Вт при мощности накачки 48 Вт. Выходное излучение имело почти гауссово распределение.

Система удвоения частоты излучения. УФ излучение было получено путем удвоения частоты излучения лазера на красителе на нелинейном кристалле. Излучение усилителей на красителях фокусировалось на кристалл ВВО длиной 7 мм линзой с фокусным расстоянием 8.5 см. Кристалл располагался на расстоянии 40 см от центра кюветы выходного каскада. При используемых параметрах комплекса мощность лазеров на растворах органиче-

ских красителей составила 12 Вт в диапазоне длин волн 600–615 нм, что дало возможность получить вторую гармонику ($\lambda_1 = 307.6$ нм, $\lambda_2 = 303.6$ нм) со средней мощностью излучения 3 Вт и длительностью импульса по полувысоте 9 нс с каждого из каналов при хорошем пространственном распределении, близком к гауссову.

Комплекс перестраиваемых лазеров совместно с системой преобразования излучения во вторую гармонику позволяет получить предельно узкий спектр выходного излучения. В нашем случае при длительности импульса на полувысоте $\tau_{\text{пул}} = 10$ нс предельная ширина линии излучения оконечного усилителя на красителе $\Delta\nu_1 \approx (2\pi\tau)^{-1} = 16$ МГц, а излучение второй гармоники $\Delta\nu_2 = 2\Delta\nu_1 \approx 32$ МГц. Экспериментально измеренная ширина линии излучения второй гармоники оказалась порядка 50 МГц.

В процессе длительной непрерывной эксплуатации (до 100 ч) спектральные и энергетические характеристики всего лазерного комплекса хорошо поддерживались и воспроизводились. Это позволило сопровождать физические исследования наработкой весовых количеств изотопов.

3. Когерентное изотопически-селективное двухфотонное возбуждение атомов

3.1. Краткое описание двухфотонного возбуждения и его математическая модель

Ранее разделение изотопов осуществлялось, как правило, с помощью фотоионизации последовательностью некогерентных однофотонных переходов. Этому методу посвящена обширная литература, а наиболее подробно он рассмотрен в обзоре [14]. Двухфотонное возбуждение атомов через промежуточный уровень состоит в том, что переход в конечное состояние происходит в результате одновременного поглощения двух фотонов, когда промежуточный уровень заселяется незначительно. Практическое разделение изотопов с помощью двухфотонного возбуждения стало возможным благодаря существенному совершенствованию лазерной техники, произошедшему в последнее время [52–55].

Общая схема двухфотонного возбуждения атомов показана на рис.2. Она характеризуется наличием отстройки Δ резонансной частоты и отклонением δ суммы частот излучений от точного двухфотонного резонанса (для

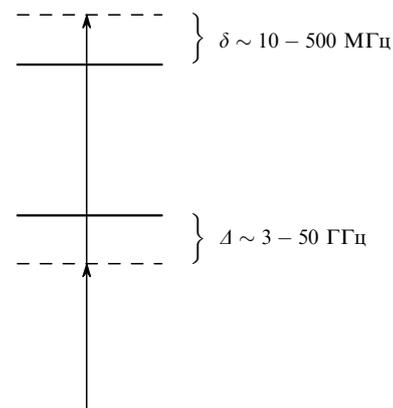


Рис.2. Схема двухфотонного возбуждения атомов.

краткости будем называть δ девиацией). Оптимальное значение девиации отлично от нуля [56].

В условиях короткого импульса излучения (времена поперечной релаксации сравнимы с длительностью импульса или много больше нее) и узкого спектра излучения (ширина спектра излучения сравнима с обратной величиной длительности импульса) для описания взаимодействия излучения с атомами необходимо использовать когерентное приближение. В соответствии с теоретической моделью [57] динамика трехуровневой схемы может быть описана с помощью аппарата матрицы плотности. В действительных переменных уравнения для элементов матрицы плотности в случае трехуровневой схемы атома в электромагнитных линейно поляризованных полях выглядят следующим образом [56]:

$$\begin{aligned} \frac{d}{dt}\rho_{11} &= -2\mu_1 V_1 + A_{21}\rho_{22}, \\ \left(\frac{d}{dt} + \frac{1}{T_2}\right)\rho_{22} &= 2(\mu_1 V_1 - \mu_2 V_2) + A_{32}\rho_{33}, \\ \left(\frac{d}{dt} + \frac{1}{T_2} + W_3\right)\rho_{33} &= 2\mu_2 V_2, \\ \left(\frac{d}{dt} + \frac{1}{2T_2}\right)u_1 &= -\Omega_1\mu_1 - \mu_3 V_2, \\ \left(\frac{d}{dt} + \frac{1}{2T_2}\right)\mu_1 &= \Omega_1 u_1 + V_1(\rho_{11} - \rho_{22}) + V_2 u_3, \\ \left(\frac{d}{dt} + \frac{1}{2T_2} + \frac{1}{2T_3} + \frac{W_3}{2}\right)u_2 &= -\Omega_2\mu_2 - \mu_3 V_1, \\ \left(\frac{d}{dt} + \frac{1}{2T_2} + \frac{1}{2T_3} + \frac{W_3}{2}\right)\mu_2 &= \Omega_2 u_2 + V_2(\rho_{22} - \rho_{33}) - V_1 u_3, \\ \left(\frac{d}{dt} + \frac{1}{2T_3} + \frac{W_3}{2}\right)u_3 &= -(\Omega_1 + \Omega_2)\mu_3 + \mu_2 V_1 - \mu_1 V_2, \\ \left(\frac{d}{dt} + \frac{1}{2T_3} + \frac{W_3}{2}\right)\mu_3 &= (\Omega_1 + \Omega_2)u_3 - u_2 V_1 + u_1 V_2, \end{aligned} \quad (1)$$

где $V_1 = -d_1 E_1 / 4\pi h$; $V_2 = -d_2 E_2 / 4\pi h$; E_1 и E_2 – амплитуды напряженности электрического поля, соответствующие первому и второму переходам; $\Omega_{1,2}$ – отстройки частот переходов; $u_{1,2}$ и $\mu_{1,2}$ – синфазная и сдвинутая на $\pi/2$ компоненты поляризации соответственно, нормированные на дипольный момент перехода; u_3 и μ_3 – действительная и мнимая части элемента матрицы плотности ρ_{13} ; $d_{1,2}$ – дипольные моменты переходов; ω_{32} и ω_{21} – частоты переходов; $\omega_{1,2}$ – частоты излучения; A_{ij} – коэффициенты Эйнштейна; $T_{2,3}$ – времена жизни второго и третьего уровней; W_3 – скорость разрушения верхнего уровня за счет внешних процессов (фотоионизация, суперлюминесценция, химические реакции). Для параллельных пучков излучения $\Omega_1 = \omega_{21}(1 - v/c) - \omega_1$, $\Omega_2 = \omega_{32}(1 - v/c) - \omega_2$, а для встречных пучков $\Omega_2 = \omega_{32}(1 + v/c) - \omega_2$, где v – скорость атома. Предполагается, что распределение атомов по скоростям является максвелловским, а уширение линии – доплеровским.

Система уравнений (1) не описывает динамику электрического поля. Тем самым отбрасываются эффекты,

связанные с деформацией формы импульса излучения и образованием солитонов. Однако эти эффекты существенны, когда атомы не только поглощают излучение, но и отдают энергию полю излучения [58]. В задачах разделения изотопов переизлучение атомов нежелательно, т.к. при этом уменьшается степень их возбуждения и вследствие динамического штарк-эффекта падает селективность. Поэтому будем рассматривать импульсы, энергии которых сравнительно невысоки, но достаточны для того, чтобы переводить на верхний уровень значительную часть атомов.

3.2. Двухфотонное возбуждение атомов свинца

Рассмотрим возможности удаления радиоактивного изотопа ^{210}Pb методом фотоионизации. Свинец и свинцово-оловянные сплавы с низкой радиоактивностью необходимы для производства микрочипов с тактовой частотой выше 500 МГц. Природный свинец содержит изотоп ^{210}Pb , появляющийся в результате распада ^{238}U . Изотоп ^{210}Pb в своем последующем распаде переходит в ^{210}Po , который вследствие α -распада переходит в ^{206}Pb . Быстрые α -частицы, проникая в p - n -переход, приводят к нарушению работы чипа. Изотоп ^{210}Pb может быть удален из свинца только методами разделения изотопов. Для лазерного разделения изотопов эта задача является практически идеальной [55]. Концентрация указанного изотопа в свинце чрезвычайно мала и составляет всего $\sim 10^{-13}$ %. В данном случае поглощение излучения на атомах ^{210}Pb пренебрежимо мало и практически отсутствуют проблемы, связанные с самофокусировкой излучения и пространственно-временным согласованием импульсов излучения. Это позволяет использовать достаточно протяженные области взаимодействия излучения с веществом (несколько десятков метров).

На рис.3 показана схема уровней атомов свинца, которые могут быть использованы в процессе фотоионизации. Сплошными линиями обозначены возможные каналы фотоионизации, штриховыми – переходы, обусловленные спонтанным распадом уровней. Первый переход с основного уровня на резонансный определяется практически однозначно, т.к. переходы на более высокие уровни требуют слишком малых длин волн излучения. Для второго перехода рассматривались два возможных варианта – возбуждение уровня $7p\ ^3D_1$ излучением Nd:YAG-лазера и возбуждение уровня $8p\ ^3D_1$ излучением лазера на красителе родамин 6Ж.

В первом случае выбор лазера обусловлен тем, что частота его излучения всего на 6 см^{-1} выше, чем частота перехода, и поэтому она настраивается на точный резонанс изменением температуры рабочего кристалла. Во втором случае выбор фотоионизирующего излучения в

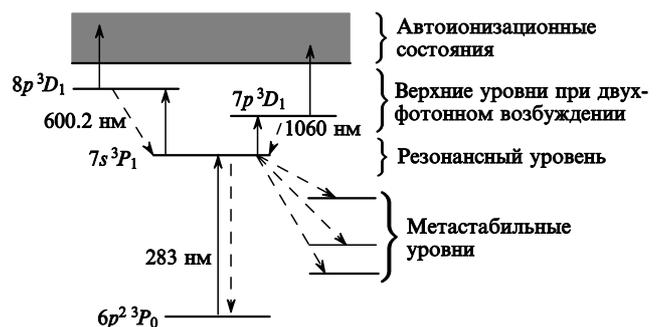


Рис.3. Схема переходов в атоме свинца.

значительной степени зависит от структуры автоионизационных уровней и их времени жизни.

С помощью описанного выше лазерного комплекса, обеспечивающего широкий диапазон перестраиваемого излучения, были выбраны автоионизационные уровни, сечения возбуждения которых составляют $\sim 10^{-15}$ см². В этом случае можно обеспечить превышение вероятности фотоионизации над вероятностью радиационного распада верхнего уровня [11] при сравнительно небольших мощностях ионизирующего излучения.

Основная цель расчетов состояла в том, чтобы определить условия максимальной производительности системы с учетом ограничений на параметры излучения.

Выбор параметров излучения при фотоионизационном выделении ²¹⁰Pb обсуждался в работе [55]. Расчеты проводились для идеально коллимированного атомарного пучка. Было выяснено, что производительность системы определяется поглощением излучения атомами всех изотопов, кроме выделяемого ²¹⁰Pb, которого в смеси пренебрежимо мало. Минимизация поглощения приводит к жестким требованиям к величине отстройки. Последняя зависит от энергий излучения и длительностей импульсов. Для каждой энергии излучения существует своя оптимальная отстройка частоты. При плотности энергии 50 мкДж/см² она находится в диапазоне 30–60 ГГц

На рис.4 показаны результаты расчета относительной населенности верхнего уровня n_3 , метастабильных уровней n_m и концентрации ионов n_1^+ изотопа ²¹⁰Pb при оптимальных отстройках частоты и задержке ионизирующего импульса для переходов $6p^2\ ^3P_0 \rightarrow 7s\ ^3P_1 \rightarrow 8p\ ^3D_2$. Приведены также временные профили импульсов излучения. Расчеты проведены при плотности энергии импульсов на первом и втором переходах 50 мкДж/см², длительностях импульсов по полувысоте 15 нс, средней вероятности фотоионизации третьего уровня 10^9 с⁻¹, длительности импульса фотоионизации по полувысоте 10 нс, отстройке резонансной частоты 47 ГГц и девиации 30 МГц. Видно, что для данного варианта расчетов степень ионизации изотопа ²¹⁰Pb превышает 0.9. Степень ионизации остальных изотопов близка к 0.001.

В последнее время на рынке материалов для микроэлектроники увеличился спрос на свинец, в котором содержание изотопа ²¹⁰Pb уменьшено в 100–1000 раз по сравнению с его содержанием в природном свинце. В связи с этим необходимо несколько раз провести фотоионизацию. Расстояние в 10 см атомы свинца в коллимированном пучке проходят за время, достаточное для того, чтобы трижды осуществить процесс фотоионизации

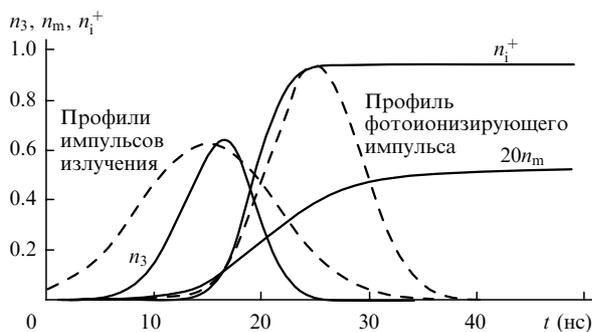


Рис.4. Временные зависимости населенностей верхнего уровня (n_3), метастабильных уровней (n_m) и концентрации ионов (n_1^+), а также профили фотоионизирующего импульса и импульсов излучения.

при частоте следования импульсов 10 кГц. Однако действие третьего импульса уже не дает желаемого эффекта, т.к. за один импульс на метастабильных уровнях скапливается более 2.5 % атомов (см. рис.4), которые не участвуют в фотоионизации. В связи с этим следует принять специальные меры по разрушению метастабильных атомов за время между импульсами излучения.

При использовании 50 % мощности излучения по первому переходу предельная производительность системы в условиях описанного выше лазерного комплекса оценивается на уровне 1 г/с (около 2 т изотопически-измененного продукта в месяц при круглосуточной работе). Следовательно, получение низкорadioактивного свинца по данной технологии [55] становится коммерчески выгодным крупномасштабным производством.

3.3. Двухфотонное возбуждение атомов бора и кремния

Успешная реализация разделения изотопов Pb в полупромышленных масштабах стимулирует исследование возможности применения метода для разделения других изотопов. Рассмотрим изотопически-селективную фотоионизацию атомов бора и кремния лазерным излучением с помощью перестраиваемых лазеров на красителях.

Природное содержание стабильных изотопов кремния распределилось следующим образом: ²⁸Si – 92.2 %, ²⁹Si – 4.7 %, ³⁰Si – 3.1 %. В некоторых технологических приложениях прежде всего необходима высокая изотопическая чистота кремния, поэтому предпочтительнее выделять изотоп ²⁸Si, имеющийся в природном кремнии в наибольшем количестве. Природное содержание стабильных изотопов бора таково: ¹⁰B – 19.9 %, ¹¹B – 80.1 %. Задача состоит в том, чтобы из смеси двух изотопов выделить изотоп ¹⁰B для применения в ядерном реакторостроении и получить чистый изотоп бора для уменьшения толщины $p-n$ -переходов.

Для атомов кремния и бора предлагаются сходные схемы фотоионизации с двухфотонным возбуждением одного из высоколежащих состояний через резонансный уровень. Существенно то, что имеется в виду двухфотонное, а не двухступенчатое возбуждение. Для кремния предложена схема $3p^2\ ^3P_2 \rightarrow 4s\ ^3P_2 \rightarrow 5p\ ^3D_2$, для бора – $2p^2\ ^3P_{1/2} \rightarrow 3s^2\ ^3S_{1/2} \rightarrow 4p\ ^3P_{1/2}$. Длины волн указанных переходов для кремния и бора совпадают с точностью до 1.5 %. Близки также силы осцилляторов переходов и времена жизни уровней, поэтому оказываются близкими оптимальные плотности энергий для кремния и бора. На рис.5 показаны схемы уровней атомов бора и кремния, которые предложено использовать при фотоионизации.

Выбор первого (самого нижнего) уровня неоднозначен. Основное состояние бора расщеплено на два подуровня с расстоянием между ними 15 см^{-1} . Энергетичес-

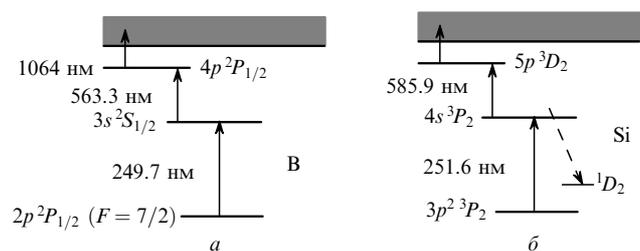


Рис.5. Схемы фотовозбуждения атомов бора (а) и кремния (б).

кие зазоры между этими подуровнями значительно меньше тепловой энергии атомов, и можно считать, что они заселены пропорционально статистическим весам. Кроме того, каждый из этих подуровней расщеплен на подуровни сверхтонкой структуры, поскольку атомы ^{10}B имеют отличный от нуля ядерный спин ($I = 3$). Следовательно, уровни дуплета $2p^2P_{1/2}$ будут расщеплены на два подуровня сверхтонкой структуры, а $2p^2P_{3/2}$ – на четыре подуровня. Только один из этих шести подуровней может быть выбран в качестве нижнего уровня в схеме двухфотонного возбуждения. В данной работе рассматривались подуровни только нижнего уровня дуплета $2p^2P_{1/2}$ с более простой структурой сверхтонкого расщепления.

Необходимые данные о сверхтонкой структуре резонансной линии изотопов ^{11}B и ^{10}B приведены в [59, 60]. Селективность возрастает по мере удаленности компоненты сверхтонкой структуры выделяемого изотопа ^{10}B от компонент изотопа ^{11}B . Компонента с полным вращательным моментом $F = 7/2$ имеет в этом смысле преимущество перед компонентой с $F = 5/2$. Именно это состояние и предполагается использовать в качестве первого нижнего уровня в схеме возбуждения.

В качестве второго состояния выбирается резонансный уровень $3s^2S_{1/2}$, имеющий большое сечение фотовозбуждения, время жизни которого составляет 4.1 нс [59]. В качестве третьего состояния, напротив, следует выбирать долгоживущий уровень, т. к. при этом снижаются потери на спонтанное излучение и смягчаются требования к мощности ионизирующего излучения. На роль третьего состояния подходит уровень $4p^3P_{1/2}$, имеющий время жизни 210 нс [59], однако окончательный выбор в значительной степени будет зависеть от эффективности ионизации.

Основная цель расчетов состояла в том, чтобы определить радиационные параметры, соответствующие максимальной производительности системы. Необходимо было найти условия, при которых за время одного импульса излучения во всем активном объеме образовывалось максимально возможное число ионов изотопов ^{10}B и ^{28}Si при высокой степени их чистоты. При этом энергия излучения на первом переходе ограничена и составляет ~ 0.1 мДж. На остальных переходах она может быть на порядок выше.

Рассматривался случай идеально коллимированного пучка атомов. Данные по временам жизни уровней и силам осцилляторов взяты из [59]. Импульсы излучения по первому и второму переходам предполагались прямоугольными с длительностью 10 нс. Характерное время ионизации третьего уровня выбиралось равным 10 нс. Ионизирующий импульс излучения начинался сразу по окончании возбуждающего импульса.

Эффективность двухфотонного возбуждения зависит от отстройки Δ резонансной частоты. Но особенно резко она зависит от девиации δ (отклонения суммы частот переходов от суммы частот лазерного излучения). На рис. 6 представлены частотные зависимости степени ионизации изотопов бора. Предполагалось, что частота излучения на первом переходе фиксирована, а изменяется частота излучения на втором переходе. Осцилляции на частотной характеристике в случае как однофотонного, так и двухфотонного возбуждения являются характерными для когерентного взаимодействия излучения с атомами. По логарифмической кривой (рис. 6, б) можно сделать оценку сверху степени ионизации изотопа ^{11}B . При смещении

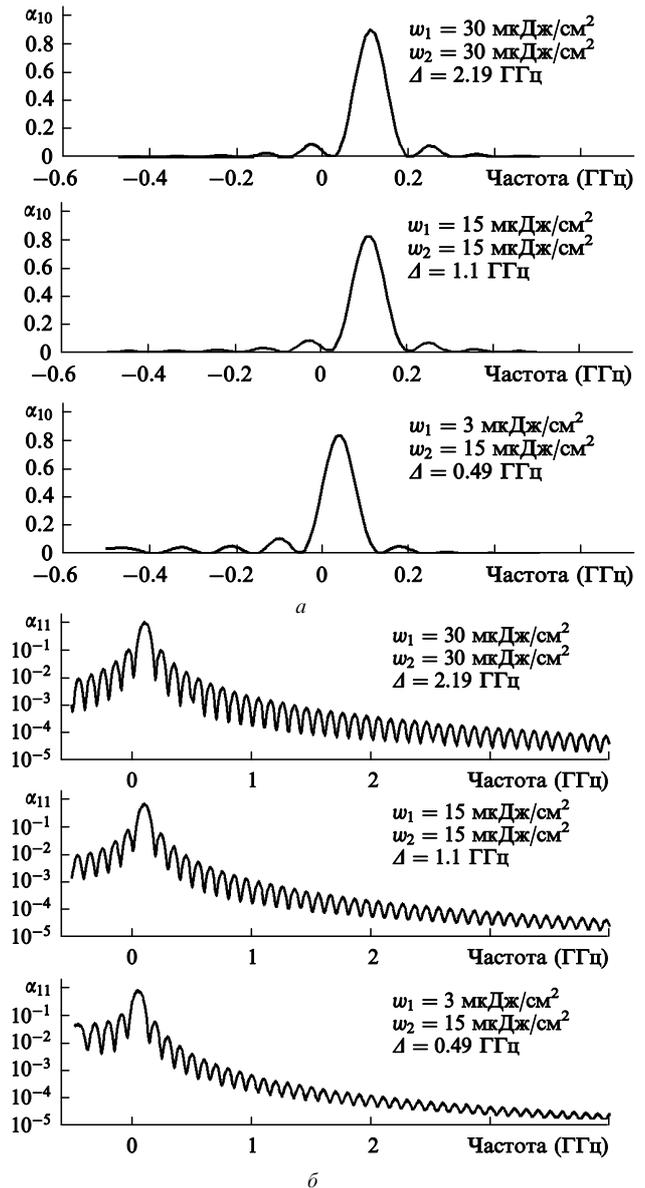


Рис. 6. Частотные зависимости α_{10} , α_{11} степени ионизации изотопов бора ^{10}B , ^{11}B в линейном (а) и логарифмическом (б) масштабах при разных плотностях энергии на первом (w_1) и втором (w_2) переходах и разных отстройках Δ .

частоты на 4000 МГц степень ионизации будет примерно на четыре порядка ниже максимальной степени ионизации ^{10}B . Аналогичные зависимости имеют место для изотопов кремния.

Для каждого набора энергий излучения существуют оптимальные отстройка резонансной частоты и девиация. На рис. 7 представлены оптимальная девиация и степени ионизации атомов изотопов бора в зависимости от отстройки при оптимальной девиации, которая представлена там же. Видно, что степень ионизации атомов ^{10}B имеет максимум по величине отстройки. Нежелательная ионизация атомов изотопа ^{11}B резко падает в области отстроек, значение которых меньше оптимального, поэтому в случае бора отстройка может выбираться равной ее оптимальному по степени ионизации значению. При этом, как видно из рис. 7, обеспечивается высокая селективность.

Аналогичные результаты имеют место и для атомов кремния. Спектрограмма кремния при возбуждении чет-

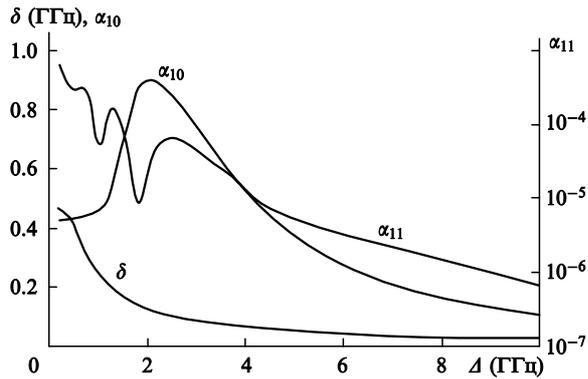


Рис.7. Степени ионизации α_{10} и α_{11} атомов изотопов ^{10}B и ^{11}B и оптимальная девиация δ в зависимости от отстройки при плотности энергии излучения 30 мкДж/см^2 .

ных изотопов практически совпадает со спектрограммой бора. Однако, поскольку изотопические смещения у кремния примерно на порядок ниже, то и селективность фотоионизации существенно меньше, чем у бора. Предполагалось, что линии излучения настроены в соответствии с переходами $3p^2\ ^3P_2 \rightarrow 4s\ ^3P_2 \rightarrow 5p\ ^3D_2$.

Расчеты показали, что

- степень ионизации может достигать уровня 0.9;
- ширина (по полувысоте) спектральной зависимости степени ионизации слабо зависит от энергии импульсов при оптимальных отстройке и девиации и составляет около 100 МГц;
- оптимальная девиация возрастает с ростом энергии.

Важнейшим результатом является то, что ширина спектральной зависимости степени ионизации, составившая $\sim 100 \text{ МГц}$, значительно меньше расстояния от возбуждаемой линии до ближайшей линии изотопа ^{11}B . Это обуславливает преимущественную ионизацию атомов ^{10}B .

Высокая степень ионизации атомов бора и кремния (~ 0.9) может быть достигнута в широком диапазоне энергий за счет соответствующего выбора отстройки и девиации. Расчеты показали, что вполне приемлемой является плотность энергии импульсов $\sim 30 \text{ мкДж/см}^2$. При этом отстройка составляет $\sim 2 \text{ ГГц}$, а девиация $\sim 0.1 \text{ ГГц}$. Вероятности возбуждения атомов ^{10}B и ^{28}Si равна ~ 0.9 , атомов ^{11}B – 0.00003, а атомов ^{30}Si – около 0.02. Из этого следует, что степень очистки бора теоретически может быть чрезвычайно высокой, в то время как у кремния она на несколько порядков ниже.

Производительность лазерного разделения изотопов определяется достижимой мощностью излучения. Как показали расчеты, в идеальных условиях степень ионизации может достигать 0.9. Тогда на один ион тратится приблизительно один квант излучения по каждому каскаду. Зная энергии импульсов, можно оценить общее число ионов во всем объеме. Положим для оценки, что на первом переходе, т. е. в области 250 нм, достижима мощность 1 Вт при частоте следования импульсов 10 кГц. Этому соответствует образование 1.2×10^{18} ионов в секунду. При идеальной экстракции ионов предельная производительность для бора составляет 0.07 г/ч, для кремния – 0.2 г/ч. Однако реальные цифры будут меньше. В силу продольной и поперечной неоднородностей пучка излучения разным участкам в активном объеме будут соответствовать различающиеся интенсивности излучения и, как следствие, разные степени ионизации. Кроме того,

в процессе экстракции ионов часть из них будет теряться на поверхностях элементов конструкции экстрактора, предназначенных для защиты коллекторов от попадания атомов нежелательных изотопов. Все это уменьшает предельную производительность как минимум вдвое. Таким образом, реально можно рассчитывать на наработку этих изотопов не более 0.03 г/ч для бора и 0.1 г/ч для кремния на 1 Вт мощности излучения при непрерывной работе.

4. Фотохимическое разделение изотопов цинка с использованием двухфотонного возбуждения

4.1. Описание метода

Атом цинка относится к числу элементов, разделение изотопов которых в весовых количествах методами лазерной фотоионизации вызывает затруднения. Главными причинами этого являются плохая аккомодация даже на холодных поверхностях и отсутствие близлежащих автоионизационных состояний. В работах [44, 45] экспериментально продемонстрировано разделение изотопов цинка другим методом. В его основу также положено двухфотонное возбуждение Zn в состоянии $6s\ ^3S_1$, но при поглощении двух встречных фотонов с $\lambda_1 = 0.307 \text{ мкм}$ и $\lambda_2 = 0.303 \text{ мкм}$ (рис.8). Близость энергий этих фотонов при двухфотонном процессе обеспечивает уменьшение доплеровского уширения до 20 МГц, что существенно меньше изотопных сдвигов. Состояние $6s\ ^3S_1$ затем трансформируется в $4p\ ^3P^0$ в цепочке спонтанных и вынужденных переходов как через промежуточные уровни $5p\ ^3P^0_{0,1,2}$ и $5s\ ^3S_1$, так и напрямую.

Интеркомбинационные переходы между системами синглетных и триплетных уровней атома Zn очень слабы, поэтому после двухфотонного возбуждения благодаря быстрым процессам (менее 30 нс) все атомы оказываются в состоянии $4p\ ^3P^0$. Для предотвращения изотопически-неселективного прямого возбуждения атомов Zn в

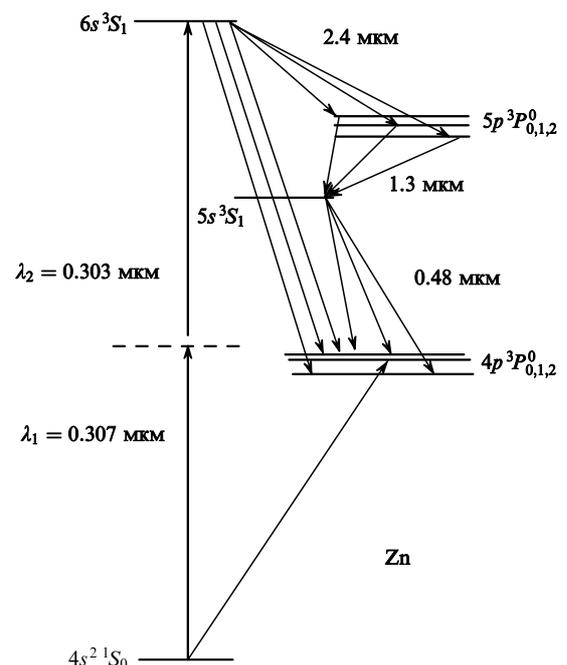
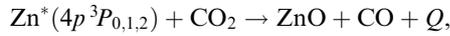


Рис.8. Схема переходов в атоме цинка.

однофотонном процессе накачки по первому интеркомбинационному переходу частота излучения лазера отстраивалась от точного резонанса на 4–5 доплеровских полуширин.

Для выделения нужного изотопа используется фотохимическая реакция



константа скорости которой $k = 2.5 \times 10^{-10} \text{ см}^3 \cdot \text{с}^{-1}$, что на 4–5 порядков выше, чем скорость реакции невозбужденного атома при рабочих температурах; $Q = 1.3 \text{ эВ}$. Это обеспечивает высокую селективность процесса. При давлении CO_2 , равном 0.1 Тор, скорость реакции на порядок больше вероятности спонтанного распада $6p^3P_j^0$ -состояния (10^5 с^{-1}), а квантовая эффективность превышает 50%. Продуктом этой реакции, как и ряда других, является устойчивое соединение ZnO , которое осаждается на коллекторе. Остальные реагенты выкачиваются из области разделения.

Разделение изотопов проводилось в потоке CO_2 с парами атомов Zn при относительно высоком давлении CO_2 ($\sim 1 \text{ Тор}$). Так как концентрация атомов Zn невелика ($\sim 10^{13} \text{ см}^{-3}$), то для повышения производительности необходима высокая скорость прокачки Zn через рабочую кювету разделительного модуля. При поглощенной мощности 2 Вт число прореагировавших атомов N_a равно числу поглощенных фотонов: $N_a = P_{ab}/h\nu$, где P_{ab} – поглощенная мощность, $h\nu$ – энергия кванта на резонансном переходе. При $P_{ab} = 2 \text{ Вт}$ число прореагировавших атомов $N_a = 3.2 \times 10^{18} \text{ ат./с}$, что соответствует скорости прокачки 320 л/с. Давление CO_2 примерно на 3 порядка больше, что вызывает трудности при прокачке CO_2 и паров Zn в общем потоке. Поэтому в настоящей работе прокачка рабочей смеси осуществляется следующим образом: CO_2 – вдоль луча со скоростью $\sim 2 \text{ л/с}$, паров Zn – поперек луча, от испарителя до холодной стенки. В области прокачки Zn находился коллектор для сбора продукта в виде изотопически видоизмененной окиси цинка.

4.2. Поляризации излучений

Предложенная схема фотовозбуждения $4s^1S_0 \rightarrow 4p^3P_1 \rightarrow 6s^3S_1$ не работает при использовании параллельных линейных поляризаций излучения. Такой переход запрещен правилами отбора. Для линейно поляризованного света магнитные квантовые числа $M = M'$, что позволяет выделить отдельные каналы фотовозбуждения. Однако имеет место запрет на переход, если $M = M' = 0$ и $J = J'$ (J – вращательное квантовое число). Первый переход в предложенной схеме выделяет единственный канал с $M = 0$, т. е. на всех переходах должно быть $M = M' = 0$, но на втором переходе $J = J'$ и, следовательно, переход запрещен. В таких случаях запрет может быть снят при использовании света с круговой поляризацией [57], что, однако, сопряжено с практическими трудностями. Связаны они с тем, что довольно сложно контролировать степень эллиптичности излучения и качество пластинок $\lambda/4$. Экспериментально измеренная эффективность поглощения излучения в активной среде сильно зависит от ориентации таких пластинок.

Теоретическое рассмотрение показало, что вместо круговых поляризаций можно использовать две линейные поляризации, но скрещенные под углом 90° . По-

скольку объем статьи не позволяет привести подробное теоретическое обоснование этого, дадим объяснения на качественном уровне.

Предположим, что на первом и втором переходах плоскости поляризации излучения перпендикулярны друг другу. Рассмотрим две системы координат, у которых оси квантования z направлены вдоль направления поляризации излучения этих переходов. При замене одной системы координат другой состояние с $M = 0$ на втором уровне в соответствии с правилами преобразований ψ -функций [61] перейдет в комбинированное состояние с $M = -1$ и $M = 1$ в новой системе координат. Из этих состояний линейно поляризованное излучение на втором переходе соответственно возбуждает уровни с теми же M на третьем уровне. Таким образом, возбуждение третьего уровня становится возможным при использовании скрещенных линейных поляризаций.

Чтобы в уравнениях для матрицы плотности избежать учета всех состояний с разными M , можно воспользоваться следующим формальным приемом. Как известно [61], вместо набора собственных функций вырожденных состояний можно использовать эквивалентный ортонормированный базис из линейных комбинаций этих функций. Мы используем при квантовании вдоль направления распространения излучения такой набор собственных функций, при котором поляризованное по оси x излучение возбуждает на втором уровне только одну компоненту базиса. В качестве такого набора можно использовать систему функций

$$\begin{aligned} \varphi_{-1} &= \frac{i}{2}(\psi_1 - \psi_{-1}) + \frac{1}{\sqrt{2}}\psi_0, & \varphi_0 &= \frac{i}{\sqrt{2}}(\psi_1 + \psi_{-1}), \\ \varphi_1 &= \frac{i}{2}(\psi_1 - \psi_{-1}) - \frac{1}{\sqrt{2}}\psi_0, \end{aligned} \quad (2)$$

где индексы соответствуют значениям магнитного квантового числа. Набор функций (2) отвечает ортонормированному базису. Если в старом базисе возбуждались две компоненты, ψ_{-1} и ψ_1 , то теперь только одна – φ_0 . В самом деле, дипольный момент $\langle \varphi_i | d_x | \psi_g \rangle$, где ψ_g – псифункция основного состояния, отличен от нуля только для перехода в состояние φ_0 :

$$\begin{aligned} \langle \varphi_0 | d_x | \psi_g \rangle &= \left\langle \frac{i}{\sqrt{2}}(\psi_1 + \psi_{-1}) \left| \frac{(d_{-1} + d_{+1})}{2} \right| \psi_g \right\rangle \\ &= \left\langle \frac{i}{\sqrt{2}}\psi_1 \left| \frac{d_{-1}}{2} \right| \psi_g \right\rangle + \left\langle \frac{i}{\sqrt{2}}\psi_{-1} \left| \frac{d_{+1}}{2} \right| \psi_g \right\rangle \\ &= \frac{i}{2\sqrt{2}}(d_{-1} + d_{+1}) = \frac{i}{\sqrt{2}}d_{-1}, \end{aligned} \quad (3)$$

где d_{-1} , d_{+1} – дипольные моменты для левой и правой круговых поляризаций. Для остальных состояний (2) дипольный момент равен нулю.

Аналогично при возбуждении третьего уровня y -поляризованным излучением отличен от нуля только переход $\varphi_0 \rightarrow \psi_0$, и его дипольный момент

$$\langle \psi_0 | d_y | \varphi_0 \rangle = -\frac{1}{\sqrt{2}}d_{-1}, \quad (4)$$

где ψ_0 – состояние третьего уровня с $M = 0$. Для соответствующих переходов (индексы переходов опущены)

$$d_x = \frac{1}{\sqrt{3}}d, \quad d_y = \frac{1}{\sqrt{3}}d. \quad (5)$$

Дипольный момент d может быть выражен через силу осциллятора f (по поглощению) [62]

$$d^2 = \left(\frac{3he^2}{2m_e} \right) \frac{f(2J+1)}{\nu}. \quad (6)$$

Таким образом, двухфотонное возбуждение может быть рассчитано по схеме $1\psi_0 \rightarrow 2\varphi_0 \rightarrow 3\psi_0$ без учета дополнительных уровней с разными магнитными числами. Исходная система уравнений для элементов матрицы плотности остается прежней. Нетрудно показать, что матричные элементы возмущений в случае использования круговых поляризацій при одной и той же интенсивности излучения в точности равны матричным элементам при использовании линейных поляризацій. Следовательно, использование линейных поляризацій, не уступая по предельной эффективности использованию круговых поляризацій, имеет преимущество в простоте технического воплощения.

4.3. Математическая модель каскадной суперлюминесценции

Практическая реализация лазерного разделения изотопов показала, что при двухфотонном возбуждении атомов цинка имеет место нелинейная зависимость поглощения излучения от концентрации атомов. Причиной такой зависимости оказалось развитие каскадной суперлюминесценции. Экспериментально было обнаружено несколько линий в областях 2.4, 1.3 и 0.45 мкм. Мощность суперлюминесценции, измеренная в области 1.3 мкм, составила около 100 мВт. Наличие суперлюминесценции приводит к нежелательному уширению линии поглощения излучения накачки. В результате эффективность двухфотонного возбуждения падает в несколько раз. Обнаруженный эффект вынуждает использовать относительно низкие концентрации атомов.

В результате двухфотонного возбуждения открываются каналы диссипации энергии возбуждения за счет спонтанных и вынужденных переходов. На рис.8 показаны 12 возможных переходов. При этом на одной части переходов возможно образование инверсии населенностей и развитие сверхизлучения, в то время как на другой инверсия не возникает. Так, суперлюминесценция не наблюдалась на трех линиях перехода $6s^3S_1 \rightarrow 4p^3P_{0,1,2}$.

Для расчета мощностей линий и населенностей уровней пригодна некогерентная модель. Поскольку все атомы доплеровского контура возбуждаются в двухфотонном процессе на встречных пучках излучения приблизительно одинаково, следует ожидать, что ширина линий сверхсвечения будет порядка доплеровской. Время когерентности излучения не может быть больше обратной ширины спектра. Кроме того, время когерентности суперлюминесценции не может превышать время прохода излучения в активной зоне. В связи с этим излучательные переходы можно характеризовать сечениями переходов, что и происходит в некогерентном случае.

Кинетику населенностей можно рассматривать в приближении насыщенной мощности [63], когда предполагается, что $N_2/g_2 = N_1/g_1$, где индексы 2 и 1 относятся соответственно к верхнему и нижнему уровням. Однако в нашем случае желательно пользоваться более мягким условием

$$\frac{d}{dt} \left(\frac{N_2}{g_2} - \frac{N_1}{g_1} \right) = 0, \quad (7)$$

т. е. населенности уровней, приходящиеся на единицу статистического веса, могут различаться на постоянную величину. В самом деле, приближение насыщенной мощности следует из уравнения для плотности фотонов

$$\frac{d}{dt} n_p = P - \frac{n_p}{\tau}, \quad (8)$$

$$P = c\sigma n_p g_2 \left(\frac{N_2}{g_2} - \frac{N_1}{g_1} \right), \quad (9)$$

$$\sigma = \frac{1}{4} \pi \left(\frac{\ln 2}{\pi} \right)^{0.5} \frac{A\lambda^2}{\nu_d}, \quad (10)$$

где P – скорость прихода фотонов за счет вынужденных переходов; τ – время жизни фотона в активной среде; σ – сечение вынужденного перехода; A – вероятность спонтанного излучения; ν_d – ширина доплеровского спектра. Производная в (8) оценивается как n_p/τ_{pul} . Где τ_{pul} – длительность импульса, и ею можно пренебречь по сравнению с n_p/τ в правой части (8), т. к. $\tau_{\text{pul}} \gg \tau$ (τ не превышает времени прохода излучения через активную зону). Тогда

$$P = \frac{n_p}{t}, \quad (11)$$

и, как следствие, получаем пороговое условие

$$\frac{N_2}{g_2} - \frac{N_1}{g_1} = \frac{1}{\tau} c\sigma g_2. \quad (12)$$

Уравнения для населенностей можно записать в виде

$$\frac{d}{dt} N_2 = G_2 - P, \quad (13)$$

$$\frac{d}{dt} N_1 = G_1 + P, \quad (14)$$

где $G_{1,2}$ – относятся к скоростям изменения населенностей уровней за счет всех процессов, кроме вынужденных. Из уравнений (13), (14) с учетом условия (12) получаем

$$P = \left(\frac{G_2}{g_2} - \frac{G_1}{g_1} \right) \frac{g_1 g_2}{g_1 + g_2}. \quad (15)$$

Пороговое условие (12) накладывает ограничения на некоторые переходы. Назовем сопряженными каскадами две совокупности переходов, начинающихся и заканчивающихся на одних и тех же уровнях. Нетрудно показать, что суперлюминесценция будет развиваться только по тому сопряженному каскаду, на котором $\sum (g_1 f / \nu_d)^{-1}$ достигает минимального значения (сумма берется по всем переходам каскада). Это условие накладывает запрет на развитие суперлюминесценции на переходах $6s^3S_1 \rightarrow 4p^3P_{0,1,2}$ и превращает граф возможных переходов в «деревообразный», что существенно упрощает расчет мощностей излучений по разным переходам. Последовательное использование приведенной выше процедуры приводит к системе дифференциальных уравнений для населенности уровней и к системе линейных алгебраических уравнений для мощностей излучения. Матрица системы мо-

жет быть один раз обращена и мощности излучения могут быть автоматически рассчитаны при каждом значении населенностей уровней.

В случае, когда кинетика населенностей уровней в каскаде (за исключением самого верхнего уровня) определяется только процессами вынужденного излучения, расчет становится особенно простым. Можно показать, что если имеется неразветвленный каскад переходов, то мощность на любом переходе может быть найдена с помощью следующей формулы:

$$P_{i+1} = \frac{P_i g_{\Sigma}}{g_{\Sigma} + g_{i+1}}, \quad (16)$$

где P_i – скорость возбуждения за счет вынужденных переходов на i -м переходе; g_i – статистический вес верхнего уровня перехода; g_{Σ} – суммарный статистический вес всех уровней вниз по каскаду, включая нижний уровень перехода. Скорость возбуждения самого верхнего уровня определяется скоростью двухфотонного возбуждения. Рекуррентная формула (16) позволяет найти мощности всех остальных переходов.

В другом случае, когда генерация излучения развивается с одного верхнего уровня на несколько нижних, суммарная скорость возбуждения нижних уровней за счет вынужденных переходов рассчитывается по формуле, аналогичной (16):

$$P_{\Sigma} = \frac{G g_{\Sigma}}{g_{\Sigma} + g_2}. \quad (17)$$

Здесь g_2 – статистический вес верхнего уровня. Плотность фотонов распределяется пропорционально статистическим весам нижних уровней.

Рассмотренные случаи позволяют сделать вывод о том, что при расчете скорости заселения вследствие вынужденных переходов достаточно рассчитать статистический вес всех уровней вниз по дереву графа переходов и воспользоваться формулой (16) либо (17). Поскольку мы интересуемся суммарной частотой вынужденных переходов с третьего уровня в двухфотонном процессе, нам достаточно подсчитать скорость возбуждения за счет вынужденного излучения по трем переходам с верхнего уровня и воспользоваться формулой (17). В нашем случае статистические веса таковы: $g_{\Sigma} = 21$ и $g_2 = 3$.

4.4. Результаты расчетов

С целью теоретической интерпретации результатов экспериментов и оценки эффективности метода было проведено численное моделирование динамики населенностей уровней. Радиационные времена жизни рабочих уровней оказались больше длительностей импульсов излучения лазеров (5–15 нс), поэтому для корректных оценок необходимо рассматривать процессы в приближении когерентного взаимодействия излучения с веществом с учетом доплеровского распределения атомов по скоростям.

В соответствии с расчетами при использовании встречных пучков излучения может достигаться высокая степень возбуждения (0.7) атомов цинка в долгоживущие состояния $4p^3P_{0,1,2}^0$. Эти состояния образуются за счет радиационных переходов, начинающихся с верхнего уровня. Как указывалось выше, для каждой отстройки существует оптимальная девиация. Атомы, движущиеся с разными скоростями, имеют значительно отличающиеся отстройки. Изменение девиации при этом зависит от

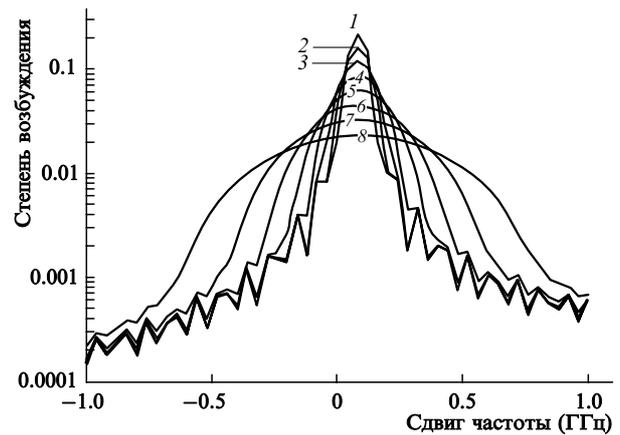


Рис.9. Частотная зависимость степени возбуждения Zn при концентрациях атомов выделяемого изотопа 2×10^{12} (1), 4×10^{12} (2), 8×10^{12} (3), 16×10^{12} (4), 32×10^{12} (5), 64×10^{12} (6), 128×10^{12} (7) и 256×10^{12} см^{-3} (8); энергия импульсов равна 250 мкДж/см^2 , отстройка – 7 ГГц.

разности длин волн на первом и втором переходах. Если для разных атомов доплеровского контура девиация остается близкой к оптимальной, то будет обеспечена высокая степень возбуждения всех атомов.

Критерием эффективности применения встречных пучков может служить соотношение $d\delta_{\text{opt}}(\Delta + \nu - \nu_0)/d\nu \sim (\lambda_2 - \lambda_1)/\lambda$, где ν_0 – центральная частота излучения доплеровского контура; Δ – отстройка частоты для покоящегося атома (предполагается, что $|\lambda_2 - \lambda_1| \ll \lambda$ и ширина доплеровского контура не больше Δ). В случае атома цинка указанное соотношение приблизительно выполняется в области рабочих энергий излучения. Поскольку оптимальная девиация падает с ростом отстройки (см. рис.7), желательно, чтобы разность длин волн по второму и первому переходам была отрицательной, что и имеет место для атомов цинка.

На рис.9 показаны результаты расчета зависимости степени возбуждения изотопа Zn от смещения частоты излучения на втором переходе при разных концентрациях изотопа. Можно видеть, что с увеличением концентрации атомов ширина линии увеличивается. Это связано с тем, что с верхнего уровня развивается суперлюминесценция на несколько нижележащих уровнях, которая приводит к уширению линии. С возрастанием концентрации растет поглощение, увеличивается населенность верхнего уровня и, как следствие, усиливается суперлюминесценция и увеличивается ширина линии. Как видно из рис.9, на крыльях линии сверхсвечение не развивается, поэтому оно не может влиять на эффективность возбуждения соседних изотопов (частота перехода ближайшего изотопа сдвинута на 660 МГц). Однако селективность разделения падает, поскольку уменьшается степень возбуждения в центре линии.

На рис.10 приведены расчетные зависимости степени возбуждения изотопа цинка, коэффициента поглощения и степени возбуждения уровней ненужных изотопов (степени загрязнения) от концентрации выделяемого изотопа. Видно, что поглощение излучения и степень возбуждения уровней ненужных изотопов нелинейно растут с увеличением концентрации атомов. Приведенные данные находятся в удовлетворительном согласии с результатами экспериментов. Результаты расчетов показали, что степень возбуждения ненужных изотопов Zn, равная 1 %, достигается при коэффициенте поглощения, не пре-

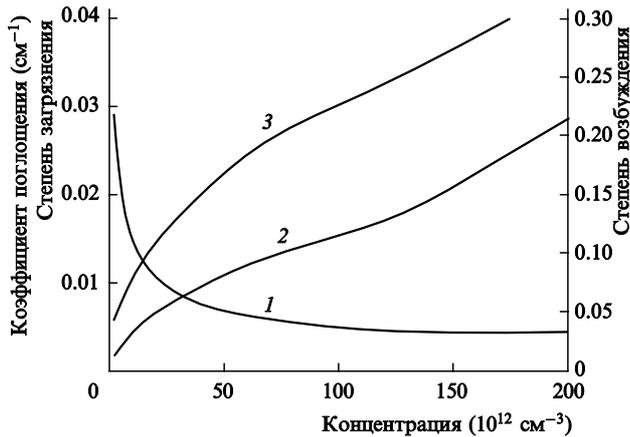


Рис. 10. Зависимости степени возбуждения (1), коэффициента поглощения (2) и степени загрязнения (3) от концентрации атомов цинка при энергии импульсов 250 мкДж/см² и отстройке 7 ГГц.

вышающем 0.004 см⁻¹. Экспериментальные измерения коэффициента поглощения дают цифры, близкие к приведенной.

4.5. Экспериментальные результаты

На рис. 11 приведены спектры сигналов люминесценции в зависимости от отстройки частоты второго перехода $\delta\nu_2$, демонстрирующие разделение изотопов Zn. При малой концентрации атомов Zn и сравнительно небольшой мощности лазеров получается полностью разрешенная изотопическая структура (рис. 11, а). Предельная ширина спектра отдельного изотопа составляет 70 МГц. При большой концентрации атомов (рис. 11, б) или высокой плотности излучения (рис. 11, в) линии двухфотонного резонанса сильно уширены и могут быть полностью перекрыты (рис. 11, г).

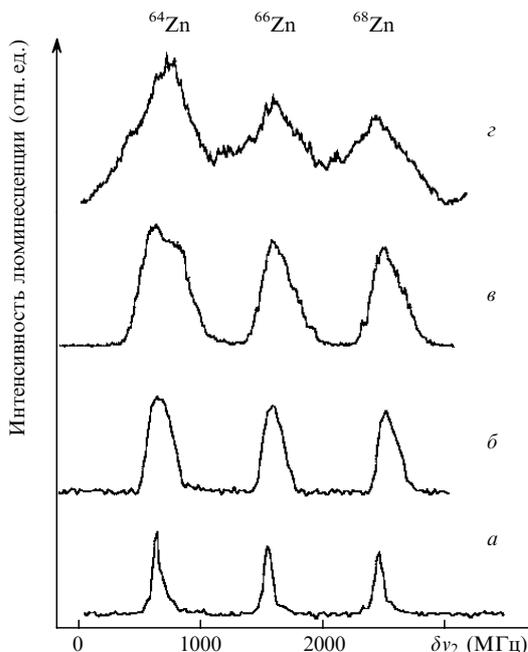


Рис. 11. Спектры люминесценции на длине волны 1.3 мкм в зависимости от $\delta\nu_2$ ($\delta\nu_1 = 5$ ГГц) при $E_1, E_2 = 150$ мкДж·см⁻², $n = 1.6 \times 10^{13}$ см⁻³ (а), $E_1, E_2 = 150$ мкДж·см⁻², $n = 2.4 \times 10^{14}$ см⁻³ (б), $E_1, E_2 = 400$ мкДж·см⁻², $n = 1.6 \times 10^{13}$ см⁻³ (в) и $E_1, E_2 = 550$ мкДж·см⁻², $n = 1.6 \times 10^{13}$ см⁻³ (г).

Экспериментальные данные в соответствии с результатами расчетов показали, что ширина линии поглощения увеличивается с возрастанием концентрации атомов изотопа или интенсивности излучения. Данный эффект может быть объяснен тем, что в этом случае увеличивается доля поглощенного излучения, а следовательно, мощность сверхсвечения, что приводит к увеличению частоты вынужденных переходов. В результате возрастает ширина линии поглощения и уменьшается селективность выделения изотопа. При заданной селективности разделения изотопов описанный эффект накладывает ограничение сверху на мощность лазеров и концентрацию атомов выделяемого изотопа.

Требования к эффективности и селективности противоречат друг другу, поэтому для каждой отдельной задачи нужно найти оптимальный компромисс между удельной производительностью, эффективностью и селективностью процесса разделения. Например, при селективности 50–100 плотность энергии излучения E_1 и E_2 не должна превышать 350 мкДж·см⁻² при отстройке $\delta\nu_1 = 9$ ГГц, а концентрация атомов цинка должна быть не более 2×10^{13} см⁻³. В этих условиях для изотопа ⁶⁶Zn достигается коэффициент поглощения $k_v \sim (3 - 4) \times 10^{-3}$ см⁻¹, что позволяет эффективно (до 50 %) использовать излучение накачки при длине кюветы 150–200 см. Производительность комплекса для этого случая составляет 0.6 г/ч и позволяет нарабатывать коммерческий продукт, чистота которого по целевому изотопу составляет не менее 98 %.

5. Фотохимическое разделение изотопов с использованием однофотонного возбуждения долгоживущих уровней

5.1. Описание экспериментальной методики

Для ряда атомов, изотопическая структура которых скрыта доплеровским контуром, метод двухфотонного возбуждения неэффективен. Это связано с тем, что его использование требует наличия двух мощных перестраиваемых источников излучения в УФ области спектра, что усложняет и удорожает экспериментальную установку по лазерному разделению изотопов. Кроме того, не всегда удается подобрать эффективные схемы возбуждения.

В работах [52, 53] для атомов цинка и рубидия экспериментально продемонстрирован другой метод разделения изотопов, который применим для многих элементов. Он основан на однофотонном селективном возбуждении долгоживущих состояний атомов. Долгоживущие возбужденные состояния атомов могут эффективно вступать в химические реакции с рядом молекул, в то время как для основных состояний скорость реакции мала. Метод базируется на использовании излучения с одной длиной волны, не требует коллимации потока атомов и не нуждается в электрической экстракции. В нем используется свойство доплеровского контура, заключающееся в том, что с увеличением отстройки частоты одновременно от частот линий всех изотопов возрастает селективность возбуждения.

Интересно отметить, что у лоренцевского контура, напротив, селективность асимптотически падает. За один импульс излучением с узким спектром возбуждается малая доля атомов. Тем не менее за несколько тысяч импульсов можно полностью «выжечь» тот изотоп, линия

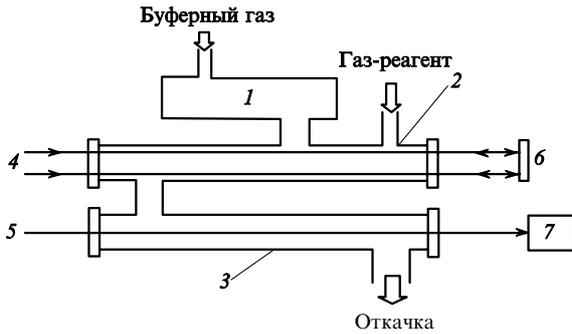


Рис.12. Схема экспериментальной установки по разделению изотопов цинка и рубидия однофотонным методом:

1 – резервуар с Zn (Rb); 2 – камера разделения; 3 – коллекторная камера; 4 – лазерное излучение; 5 – зондирующее лазерное излучение; 6 – зеркало; 7 – фотоприемник.

которого наиболее близка к частоте излучения лазера. При этом можно создать условия, при которых концентрации атомов остальных изотопов уменьшатся незначительно.

Чтобы обеспечить многократное воздействие излучения на атомы, используется продольный или поперечный режим прокачки с невысокой скоростью потока. Во многих случаях за один проход среды через активную зону можно «выжечь» одновременно несколько изотопов, сохранив при этом нужные изотопы. Использование для возбуждения отдельных компонент сверхтонкой структуры в случае нечетных изотопов приводит к их эффективному перемешиванию в результате многократных столкновений. Это позволяет полностью удалить изотоп при возбуждении лишь одной компоненты.

В эксперименте (рис.12) область разделения представляла собой нагреваемую внешней печью кварцевую либо стеклянную трубку длиной 60 см и диаметром 3 см, через которую распространялся газовый поток исследуемых атомов с аргоном и молекулами газа-реагента. Скорость прокачки смеси превышала 0.5 л/с, давление аргона составляло 1–2 Тор, а концентрация атомов газа-реагента находилась на уровне 10^{16} см $^{-3}$. При этих экспериментальных условиях время дрейфа атомов через область взаимодействия было порядка 1 с.

Атомы исследуемого изотопа поступали в область разделения из резервуара, нагреваемого отдельной печью, температура которой обеспечивала необходимую концентрацию атомов. Излучение лазера распространялось вдоль потока, обеспечивая «выжигание» возбужденных атомов за счет химической реакции. Образующиеся молекулы осаждались на стенках камеры разделения, пары элементов конденсировались на стенках коллекторной камеры, куда поступал газовый поток. Для наработки продукта использовалась двухмерная система прокачки, описанная выше.

5.2. Математическая модель

Будем предполагать далее, что характер взаимодействия излучения с атомами является некогерентным. Это означает выполнение хотя бы одного из трех условий:

- ширина линии излучения много больше обратной длительности импульса;
- степень возбуждения атомов, попадающих в контур линии излучения, много меньше единицы;
- характерное время поперечной релаксации много меньше длительности импульса.

Кроме того, мы будем рассматривать режим возбуждения с частотой следования импульсов 1–20 кГц при их длительности 10–100 нс. Такой режим характерен для накачки перестраиваемых лазеров на красителях излучением лазера на парах меди. Возможна также накачка второй гармоникой лазера на Nd:YAG. Поскольку мы рассматриваем возбуждение уровней с временами жизни в микросекундном диапазоне, их спонтанным распадом во время импульса излучения можно пренебречь.

Исходные уравнения в период импульса излучения сводятся к известным уравнениям переноса излучения и к кинетическим уравнениям. В несколько измененном виде для неполяризованного излучения они выглядят следующим образом:

$$\frac{\partial I}{\partial t} + c \frac{\partial I}{\partial z} = -cI \sum_i \sigma_i m_i, \quad (18)$$

$$\frac{\partial m_i}{\partial t} = \beta_i \sigma_i I m_i, \quad (19)$$

$$n_i = \frac{m_i + (\beta_i - 1)n_{0i}}{\beta_i}, \quad (20)$$

$$\beta_i = 1 + \frac{g_{1i}}{g_{2i}}, \quad (21)$$

где I – интенсивность излучения; m_i – величина, связанная с изменяющейся во время импульса населенностью основного состояния n_i и с неизменной суммарной концентрацией n_{0i} i -го изотопа формулами (20), (21); g_{1i} и g_{2i} – статистические веса нижнего и верхнего уровней соответственно.

Величина σ_i определяется по известной формуле

$$\sigma_i = \frac{1}{8\pi} \frac{\lambda^2}{\tau_{si}}, \quad (22)$$

где τ_{si} – радиационное время жизни уровня для рассматриваемого перехода; λ – длина волны. Уравнения записаны для некоторой фиксированной частоты.

Контур линии $I(\nu)$ представляет собой свертку контура линии излучения и соответствующего лоренцевского контура в случае столкновительного или полевого уширения линии поглощения.

Интегрирование дифференциальных уравнений (18) и (19) приводит к системе уравнений

$$\frac{dW(z)}{dz} = \sum_i \frac{1}{\beta_i} [1 - \exp(1 - \sigma_i \beta_i W)] n_{0i}, \quad (23)$$

$$n_i(z) = n_{0i}(z) \exp[-\beta_i \sigma_i W(z)], \quad (24)$$

где $W(z)$ – число фотонов в импульсе в единичном частотном интервале, приходящихся на единицу площади поперечного сечения и прошедших через сечение с координатой z . Существенно то, что после прохождения импульса состояние среды зависит не от формы импульса, а только от его энергии.

Отметим, что β_i и σ_i могут несколько различаться только у компонент сверхтонкой структуры. Во многих случаях эти различия для процесса разделения изотопов незначительны. Например, у цинка основные изотопы не имеют сверхтонкой структуры, а у бора расстояние меж-

ду компонентами сверхтонкой структуры примерно на порядок меньше изотопного сдвига. Кроме того, процесс селективного возбуждения в первую очередь зависит от отстройки частоты излучения от частоты перехода и в незначительной степени – от различий в сечениях поглощения и отношения статистических весов.

Если предположить, что указанные величины одинаковы у всех изотопов, то можно получить точное аналитическое решение уравнений (18), (19). Используя приведенное в [64] решение для m и формулу (20), можно получить выражение для изменения концентрации атомов в основном состоянии некоторого фиксированного изотопа (индекс i для простоты записи опущен):

$$\Delta n = -n_0 \left[\frac{1-f(z)}{\beta} \right], \quad (25)$$

где

$$f(z) = \frac{\exp[\sigma p(z)]}{\exp[\sigma p(z)] + \exp(\beta \sigma W_0) - 1}; \quad (26)$$

$$p(z) = \sum_i \int_0^z n_{0i}(z) dz; \quad (27)$$

W_0 – число фотонов в импульсе в единичном частотном интервале, проходящих на единицу площади поперечного сечения. Суммирование предполагается по всем изотопам.

Таким образом, исчезает необходимость решения уравнений переноса и кинетических уравнений во время импульса. Межимпульсный период описывается системой кинетических уравнений обычного вида. Эти уравнения должны учитывать химические реакции, спонтанный распад уровней и обменные реакции. Однако требование высокой селективности приводит к тому, что за время импульса возбуждается лишь незначительная часть атомов каждого изотопа, поэтому необходимо просчитывать несколько тысяч импульсов, определяя изменения населенности уровней в разных точках и на разных частотах излучения. Все это требует значительных затрат машинного времени, что обусловлено необходимостью расчета многочисленных интегральных характеристик.

При некоторых условиях, однако, удается существенно упростить положение. Для этого перейдем к интегральным по частоте концентрациям изотопа на основном уровне. Проинтегрированное по частотам изменение населенности основного уровня ΔN удобно представить в следующем виде:

$$\Delta N = -\alpha N_0 \left[\frac{1-f_0(z)}{\beta} \right], \quad (28)$$

где f_0 рассчитывается по формуле (26) на центральной частоте контура излучения. Введенный в формулу коэффициент α имеет смысл доли атомов, которые перекрываются контуром излучения:

$$\alpha = \int_0^\infty \frac{f(v)n_0(v)dv}{f_0 N_0}. \quad (29)$$

Предположим далее, что существенное влияние на населенности уровней оказывают только химическая реакция с атомами в возбужденном состоянии с характерным временем τ_{ch} и спонтанное излучение с временем жизни τ_s . При этом выполняется условие, при котором

эти времена много меньше межимпульсного интервала времени τ_f , т.е. имеет место соотношение $\tau_{ch}, \tau_s \ll \tau_f$. Тогда к началу очередного импульса излучения концентрация атомов изменится на величину, несколько меньшую полученной по формуле (28), т.к. часть возбужденных атомов высветится в основное состояние. В этом случае

$$\Delta N = -\alpha N_0 \left[\frac{1-f_0(z)}{\beta} \right] \frac{\tau_s}{\tau_{ch} + \tau_s}. \quad (30)$$

Поскольку, как указывалось выше, за время импульса возбуждается лишь незначительная часть атомов, эволюцию N в масштабах времен, значительно превышающих межимпульсный интервал τ_f , можно представить в дифференциальном виде:

$$\frac{\partial N}{\partial t} + V \frac{\partial N}{\partial z} = -\frac{\alpha N}{\tau_f} \left[\frac{1-f_0(z)}{\beta} \right] \frac{\tau_s}{\tau_{ch} + \tau_s}, \quad (31)$$

где V – скорость потока газа. Уравнение (31) учитывает перенос атомов продольным потоком газа. Однородный плоский поперечный поток будет описываться тем же уравнением, только вместо координаты z в левую часть уравнения (31) следует подставить координату x или y . В этом случае будет иметь место двухмерное распределение концентрации атомов. Поскольку время установления стационарного уровня концентраций примерно равно времени прохода газа через активную среду и много меньше технологического времени процесса, производной по времени в (31) можно пренебречь. Уравнение (31) справедливо для концентрации атомов любого изотопа. Селективность разделения обеспечивается различием α для разных изотопов.

Если в уравнении (31) перейти к безразмерным координатам $z' = z/L$ и концентрации атомов $\eta = N(z)/N(0)$, где L – длина активной зоны, то можно видеть, что решение уравнений зависит от параметров $LN(0)$ и V/L (в случае поперечного потока – только от V). Это означает, что концентрация атомов в подобных режимах можно варьировать, изменяя соответствующим образом L , а для продольного потока – еще и V .

Полагая в уравнении (31) α величиной постоянной, в установившемся режиме можно получить следующее соотношение между приведенными концентрациями i -го и j -го изотопов в любой точке активной зоны:

$$\eta_i = \eta_j^{\alpha_i/\alpha_j}. \quad (32)$$

Для примера положим, что отношение числа атомов, возбуждаемых за один импульс у двух изотопов, $\alpha_i/\alpha_j = 10$. Пусть концентрация атомов j -го изотопа уменьшилась в конце потока вдвое, тогда концентрация атомов i -го изотопа уменьшится в 2^{10} раз. Таким образом, i -й изотоп практически полностью «выжигается», в то время как потери j -го изотопа вполне приемлемы.

В уравнении (31) не учитываются реакции резонансной передачи возбуждения атомов и реакции изотопного химического обмена. Эти реакции накладывают на допустимую концентрацию атомов ограничение сверху, причем они действуют заведомо в сторону ухудшения селективности возбуждения. Избавиться от влияния этих реакций можно одним способом: путем уменьшения концентрации атомов. Чтобы при этом сохранить достаточно высокое поглощение, необходимо увеличивать длину

активной зоны. Сечение передачи возбуждения в приближении диполь-дипольного взаимодействия обратно пропорционально времени жизни верхнего уровня [65]. Поскольку нас интересуют долгоживущие состояния (на уровне нескольких микросекунд и более), то можно надеяться, что сечение будет на несколько порядков меньше, чем в типичных условиях передачи возбуждения с резонансного уровня, когда оно находится в диапазоне $10^{-12} - 10^{-13} \text{ см}^2$ [65]. Полагая для оценки сечение передачи возбуждения с долгоживущих состояний равным примерно 10^{-14} см^2 и имея в виду, что характерное время обмена должно быть не меньше времени жизни возбужденного состояния, получим ограничение сверху по концентрации атомов $\sim 10^{14} \text{ см}^{-3}$. Это значение на три порядка превышает предельную концентрацию атомов, допустимую в технологии AVLIS.

Таким образом, получена система интегродифференциальных уравнений, которая избавляет от «сквозного» решения системы уравнений от импульса к импульсу.

5.3. Результаты расчетов по разделению изотопов цинка

Расчеты проводились как для поперечного, так и для продольного потока газа и дали сходные результаты. Они показали эффективность «выжигания» изотопов, чьи линии находятся наиболее близко к линии излучения. Так, при мощности излучения 1 Вт для уменьшения концентрации изотопа ^{68}Zn в 10 раз требуется 2.5 кванта на один выведенный атом; при этом концентрация изотопа ^{66}Zn уменьшается на 30 %, а изотопа ^{64}Zn – на 5 %.

Метод особенно эффективен, когда стоит задача получения изотопа, чья линия является крайней в спектре излучения. Так, в численном эксперименте при мощности излучения 2 Вт был получен изотоп ^{64}Zn со степенью загрязнения другими изотопами 1 %. В этом случае энергетическая «стоимость» получения изотопа составила 9 квантов на атом. Однако, если линия излучения изотопа расположена в средней части спектра, энергетическая «стоимость» возрастет, поскольку понадобятся несколько циклов разделения. В соответствии с расчетами, для получения изотопа ^{66}Zn с уровнем загрязнения 1 % необходимо уже 50 квантов на атом.

Поперечная прокачка газа. Положение атомов вдоль потока газа удобно характеризовать числом воздей-

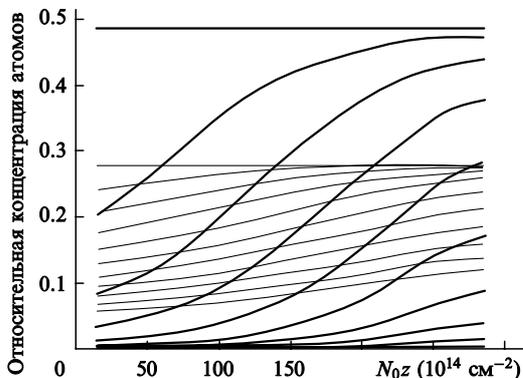


Рис.13. Пространственное распределение изотопов ^{64}Zn (жирные линии) и ^{66}Zn (тонкие линии). Кривые проведены через каждые 50 импульсов. Номера импульсов, соответствующие кривым, возрастают, начиная с горизонтальной линии, по мере уменьшения концентрации атомов изотопов. Излучение направлено в сторону увеличения координаты.

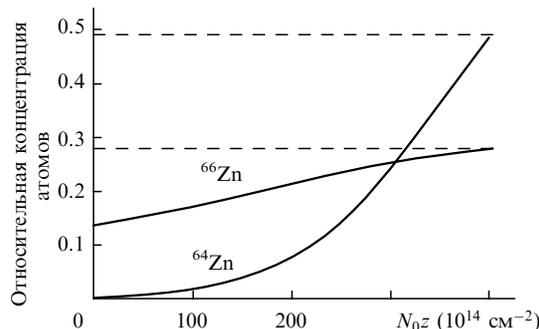


Рис.14. Пространственное распределение изотопов при продольной прокачке газа. Излучение направлено в сторону уменьшения координаты (штриховые линии – концентрация атомов в отсутствие излучения).

ствующих на них импульсов излучения. На рис.13 показаны типичные зависимости концентраций атомов изотопов от координаты z вдоль оси камеры (точнее, от N_0z , где N_0 – полная начальная концентрация атомов) и их изменение от импульса к импульсу (поток направлен перпендикулярно оси z). Видно, как происходит деформация координатного профиля концентрации изотопов ^{64}Zn и ^{66}Zn через каждые 50 импульсов.

На входе потока распределение атомов предполагается равномерным. Затем по мере движения газа происходит постепенное «просветление» среды за счет «выжигания» изотопа ^{64}Zn . Преимущественное возбуждение этого изотопа обусловлено тем, что частота излучения отстраивалась от линии перехода изотопа ^{64}Zn на 2.1 ГГц, а от линии перехода изотопа ^{66}Zn – на 2.76 ГГц (ширина спектра излучения равна 500 МГц). Основные условия эксперимента представлены ниже.

Мощность излучения (Вт)	3
Степень загрязнения ^{66}Zn изотопами ^{64}Zn и ^{67}Zn	0.0099
Число импульсов за пролетное время	500
Число квантов, приходящихся на один атом изотопа ^{66}Zn ...	20.0
Поглощение излучения в активной зоне (%)	52
Выход изотопа ^{66}Zn (отношение выходного потока ко входному (%))	31

Продольная прокачка газа. Недостатком поперечной прокачки газа является сильно неоднородное распределение вдоль оси камеры остаточного количества «выжигаемого» изотопа. Этого недостатка лишена прокачка газа вдоль оси камеры. На рис.14 представлены графики распределения двух изотопов вдоль оси трубки. Основные характеристики рассмотренного режима даны ниже.

Мощность излучения (Вт)	2
Степень загрязнения ^{66}Zn изотопами ^{64}Zn и ^{67}Zn	0.029
Число импульсов за пролетное время	3100
Число квантов, приходящихся на один атом изотопа ^{66}Zn ...	6.75
Поглощение излучения в активной зоне (%)	71
Выход изотопа ^{66}Zn (отношение выходного потока ко входному (%))	49

Характеристики метода довольно сильно зависят от частоты отстройки. На рис.15 для условий с поперечной прокачкой газа приведены основные характеристики процесса разделения изотопов. Имеет место сильно выраженный минимум по степени загрязнения изотопа ^{66}Zn нежелательными изотопами. Это обусловлено тем, что при малых отстройках ухудшается селективность возбуждения, а при больших отстройках падает поглощение излучения.

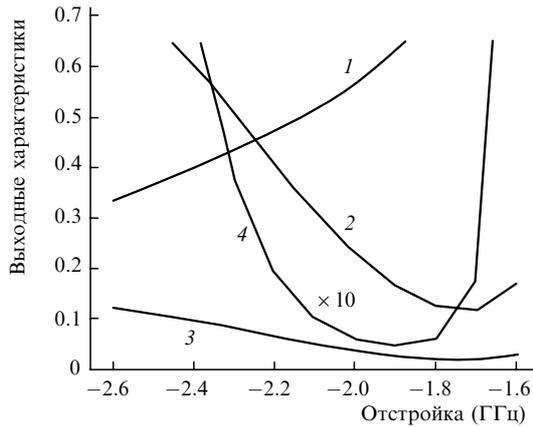


Рис.15. Основные выходные характеристики в зависимости от отстройки: полное поглощение (1), отношение выходного потока ^{66}Zn к его входному потоку (2), выход атомов ^{66}Zn на 1 квант излучения (3), степень загрязнения, в которой учитывается загрязнение ^{66}Zn изотопами ^{64}Zn и ^{68}Zn (4).

Таким образом, на примере такого «неудобного» для лазерного разделения элемента, как цинк, показано, что предлагаемый метод обладает приемлемой энергетической эффективностью и вполне может конкурировать с другими методами.

5.4. Результаты экспериментов по разделению изотопов цинка

Возбуждение атомов цинка с помощью лазера осуществлялось в области разделения вдоль потока на интеркомбинационном переходе $4s^2\ ^1S_0 - 4p\ ^3P_1^0$ ($\lambda = 307\ \text{нм}$) источником узкополосного перестраиваемого импульсного излучения, описанным в разд.2. Средняя мощность лазерного излучения составляла $\sim 2\ \text{Вт}$, диаметр пучка был равен $\sim 1\ \text{см}$. В данном варианте схемы возбуждения верхнее возбужденное состояние имело относительно большое время жизни (10.5 мкс).

На рис.16,17 приведены экспериментальные и расчетные спектры поглощения на резонансном переходе атома цинка $4s^2\ ^1S_0 \rightarrow 4p\ ^3P_1^0$ при температуре $T = 350\ ^\circ\text{C}$ для основных изотопов атомов цинка, а также суммарный контур поглощения. В качестве газа-реагента были выбраны сложные кислородсодержащие молекулы диэтилового эфира $(\text{C}_2\text{H}_5)_2\text{O}$ и метанола CH_3OH . В этом случае реакция возбужденных атомов с молекулами газа-реагента идет с образованием устойчивого соединения ZnO , которое осаждается на стенках камеры области разделения. Константа скорости реакции $\text{Zn}(4p\ ^3P_1^0)$ с диэтиловым эфиром $k^* = 1.61 \times 10^{-9}\ \text{см}^3/\text{с}$, константа скорости реакции с невозбужденными атомами при этом пренебрежимо мала: $k < 10^{-14}\ \text{см}^3/\text{с}$.

Когда частота излучения лазера настраивалась на центр доплеровского контура атомов цинка, регистрировалось практически 100%-ное «выжигание» всех атомов в коллекторной камере. Это свидетельствует об эффективном возбуждении атомов цинка в камере разделения и об эффективности химической реакции. При отстройке частоты излучения лазера от центра доплеровского контура наблюдалась деформация контура линии поглощения, регистрируемая в коллекторной камере с помощью излучения другого лазера с малой интенсивностью. На рис.17 приведены результаты этих экспериментов, проведенных при концентрации атомов $\sim 10^{13}\ \text{см}^{-3}$ в области разделения.

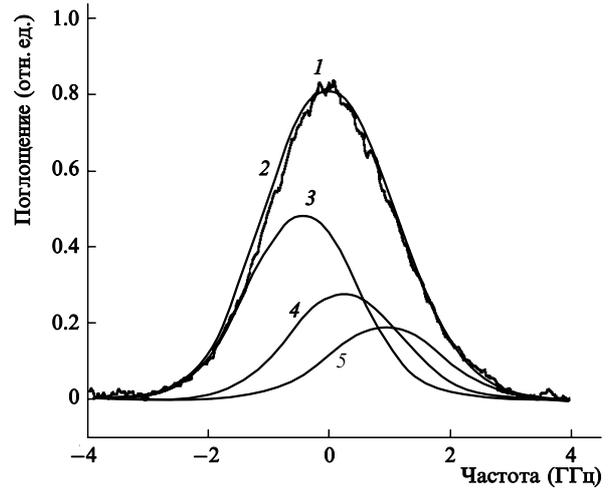


Рис.16. Спектры поглощения Zn на переходе $4s^2\ ^1S_0 \rightarrow 4p\ ^3P_1^0$ – эксперимент (1), расчет (2) и расчеты для изотопов ^{64}Zn (3), ^{66}Zn (4) и ^{68}Zn (5).

Когда частота лазера отстроена от центра на $-2\ \text{ГГц}$, максимум доплеровского контура смещается вправо. Это связано с преимущественным возбуждением и последующим «выжиганием» ^{64}Zn (см. рис.16). Противоположная ситуация возникает при отстройке частоты излучения на $2\ \text{ГГц}$. Из рис.18 также следует, что число «выжигаемых» атомов, регистрируемое в коллекторной камере, превышает число атомов, возбуждаемых в камере разделения. Это связано со вторичными реакциями образования радикалов с невозбужденными атомами.

Сопоставление сдвига максимума доплеровского контура с расчетным показало, что более 95% изотопа ^{64}Zn «выжигается» в камере разделения. Такие же результаты получены из масс-спектрометрического анализа цинка, оседающего на стенках коллекторной камеры. Достигнутая наработка изотопно измененного продукта составила $\sim 1\ \text{г}$ вещества при трехчасовой экспозиции и определялась скоростью прокачки рабочего газа.

5.5. Разделение изотопов рубидия с помощью возбуждения ридберговских состояний

Описанный в п.5.4 метод обогащения применим практически к любым атомам и молекулам, т. к. все они имеют высоковозбужденные долгоживущие состояния. Ниже в качестве примера приведены результаты разделения

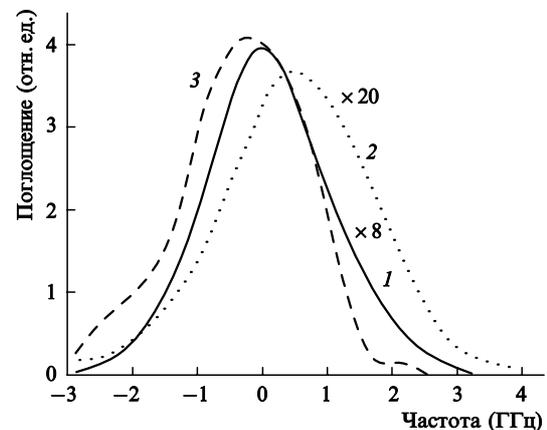


Рис.17. Спектры поглощения Zn в коллекторной камере на переходе $4s^2\ ^1S_0 \rightarrow 4p\ ^3P_1^0$ при отстройке лазера от центра на $-2\ \text{ГГц}$ (1) и $2\ \text{ГГц}$ (2); 3 – доплеровский контур.

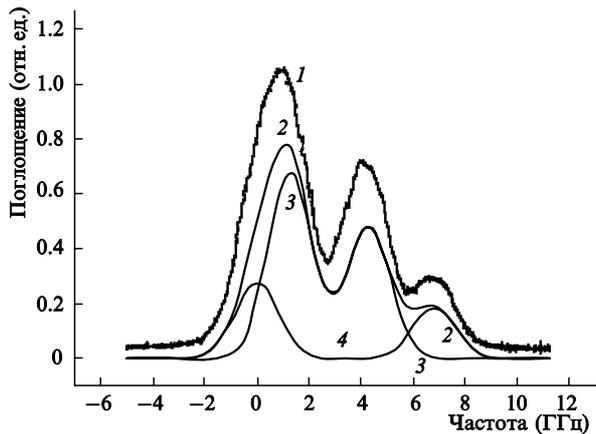


Рис.18. Спектры поглощения Rb на переходе $5S_{1/2} - 11P_{3/2}$ – эксперимент (1), расчет (2), а также расчет для изотопов ^{85}Rb (3) и ^{87}Rb (4).

изотопов рубидия как представителя группы элементов, все нижние состояния которых являются короткоживущими.

На рис.18 приведены спектры атомов рубидия в камере разделения на ридберговском переходе ($5S_{1/2} - 11P_{3/2}$), записанные по поглощению излучения и по сигналу люминесценции. В обоих случаях они идентичны. Характер спектров не менялся вплоть до давления аргона ~ 5 Тор и концентрации атомов рубидия $\sim 10^{13}$ см^{-3} . Наблюдается хорошее совпадение расчетных спектров поглощения с экспериментальными при рабочей температуре 120 °С. Там же приведены расчетные значения поглощения для отдельных компонент сверхтонкой структуры изотопов ^{85}Rb и ^{87}Rb . Использование для возбуждения двух последних компонент сверхтонкой структуры ($F = 1 \rightarrow F = 0, 1, 2$ для ^{87}Rb и $F = 2 \rightarrow F = 1, 2, 3$ для ^{85}Rb) дает хорошую селективность возбуждения выбранного изотопа. Большое время жизни ридберговского состояния (0.5 мкс в наших экспериментальных условиях) позволяет проводить эффективные химические реакции.

В качестве газа-реагента использовались молекулы метанола CH_3OH и диэтилового эфира $(\text{C}_2\text{H}_5)_2\text{O}$, константы скоростей реакций которых k^* с $\text{Rb}(11P_{3/2})$ составили 1.47×10^{-9} и 8.4×10^{-10} $\text{см}^3/\text{с}$ соответственно. Для невозбужденных атомов Rb константа скорости более чем на три порядка меньше. Разделение изотопов проводилось при таком давлении газа-реагента, при котором время жизни состояния $\text{Rb}(11P_{3/2})$ составляло менее

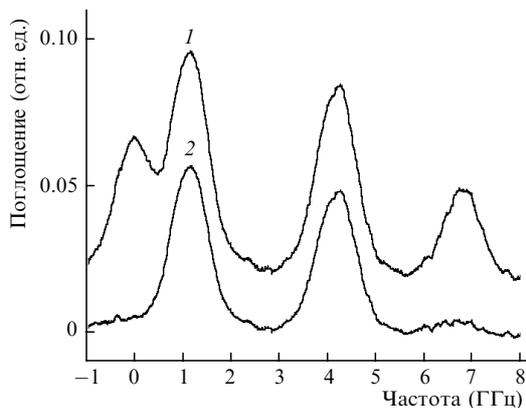


Рис.19. Спектр поглощения Rb на переходе $5S_{1/2} - 5P_{3/2}$ в отсутствие излучения накачки (1) и при его наличии (2).

50 нс. Это позволило полностью подавить его сверхсветимость и с высокой эффективностью использовать излучение накачки.

На рис.19 приведены спектры поглощения атомов рубидия при концентрации $\sim 10^{12}$ см^{-3} на переходе $5S_{1/2} - 5P_{3/2}$, регистрируемые в конце камеры разделения. На основе этих спектров можно судить об изотопическом составе атомов рубидия. Экспериментальные результаты показывают, что когда частота возбуждающего излучения настроена на пик поглощения ($F = 1 \rightarrow F = 0, 1, 2$) изотопа ^{87}Rb , в конце камеры разделения содержание этого изотопа уменьшается до менее чем $\sim 10\%$ от первоначальной величины. Важно отметить, что при использовании высоковозбужденных состояний скорости химических реакций оказываются настолько велики, что позволяют проводить разделение при сравнительно низком давлении газа-реагента (~ 1 Тор).

6. Выводы

1. Теоретически и экспериментально показана перспективность использования когерентного двухфотонного возбуждения атомов для разделения изотопов. На этой основе осуществлено разделение изотопов в условиях, когда изотопическая структура линий находится внутри доплеровского контура. Это позволило расширить круг элементов, доступных для лазерного разделения изотопов, в том числе элементов, изотопическая структура которых находится внутри доплеровского контура, в частности как у атомов Si и Zn.

2. Разработана модель и продемонстрирована высокая эффективность лазерного разделения изотопов в газовом потоке при использовании фотохимических реакций атомов в долгоживущих состояниях. Произведено разделение изотопов Rb и Zn.

3. Показана эффективность лазерного разделения изотопов с использованием высокоскоростных химических реакций ридберговских атомов.

4. Разработана модель двухфотонного когерентного возбуждения с учетом каскадной суперлюминесценции, характерной для процесса разделения изотопов в весовых количествах.

5. Разработана модель и определены условия эффективного удаления редких изотопов из продукта. Осуществлена глубокая очистка свинца от радиоактивного изотопа ^{210}Pb .

6. На основе предложенных и исследованных в работе физико-химических принципов разработан и построен многофункциональный комплекс для разделения весовых количеств изотопов широкого круга элементов. Созданы полупромышленные установки по разделению изотопов, производящие коммерчески выгодные изотопные продукты [66, 67].

1. Letokhov V.S., Ambartzumian R.V. *IEEE J. Quantum Electron.*, **7**, 305 (1971).
2. Ambartzumian R.V., Letokhov V.S. *Appl. Opt.*, **11**, 354 (1972).
3. Амбарцумян Р.В., Калинин В.П., Летохов В.С. *Письма в ЖЭТФ*, **13**, 305 (1971).
4. Letokhov V.S. *Science*, **180**, 451 (1973).
5. Letokhov V.S. *Opt. Commun.*, **7**, 59 (1973).
6. Карлов Н.В., Прохоров А.М. *УФН*, **118**, 583 (1976).
7. Летохов В.С., Мур Б. *Квантовая электроника*, **3**, 248 (1976).
8. Летохов В.С., Мур Б. *Квантовая электроника*, **3**, 485 (1976).
9. Басов Н.Г., Беленов Э.М., Исаков В.А., Маркин Е.П., Ораевский А.Н., Романенко В.И. *УФН*, **121**, 427 (1977).

10. Летохов В.С., Мишин В.И., Пурецкий А.А. *Химия плазмы* (М.: Атомиздат, вып. 4, с. 3, 1977).
11. Карлов Н.В. *Труды ФИАН*, **114**, 3 (1979).
12. Карлов Н.В., Крынецкий Б.Б., Мишин В.А., Прохоров А.М. *УФН*, **127**, 593 (1979).
13. Paisner J.A. *Appl. Phys. B*, **46**, 253 (1988).
14. Яковленко С.И. *Квантовая электроника*, **25**, 971 (1998).
15. Мишин В.А. *Изотопы*. Под ред. В.Ю.Баранова (М.: ИЗДАТ, 2000, с. 308).
16. Исаев А.А., Казарян М.А., Петраш Г.Г. *Письма в ЖЭТФ*, **16**, 40 (1972).
17. Батенин В.М., Бучанов В.В., Казарян М.А., Климовский И.И., Молодых Э.И. *Лазеры на самоограниченных переходах атомов металлов* (М.: Научная книга, 1998).
18. Little С.Е. *Metal vapour lasers* (New York, John Wiley&Sons, 1999).
19. Devis J., Devis R. Laser isotope separation program-8.1 Overview, in Laser Program Annual Report-1976, UCRL-50021-76, Lawrence Livermore National Laboratory, CA, 8/3-8 (June 1977).
20. Spaeth M. Laser isotope separation program-8.1 Overview, in Laser Program Annual Report-1976, UCRL-50021-76, CA, 8/29-33 (June 1977).
21. Shirayama S., Ueda H., Mikatsura T., Konagai Ch. *Proc. SPIE Int. Soc. Opt. Eng.*, **1225**, 279 (1990).
22. Morioka N. *Proc. SPIE Int. Soc. Opt. Eng.*, **1859**, 2 (1993).
23. Camarcat N., Lafon A., Perves J., Rosengard A. *Proc. SPIE Int. Soc. Opt. Eng.*, **1859**, 14 (1993).
24. Haunam С.А., Comaskey В.Ј., Conway J., Eggert J., Glaser J., Ng E.W., Paisner J.A., Solarz R.W., Worden E.F. *Proc. SPIE Int. Soc. Opt. Eng.*, **1859**, 24 (1993).
25. Bettinger A., Neu M., Maury J., Chatelet J.A. *Proc. SPIE Int. Soc. Opt. Eng.*, **1859**, 108 (1993).
26. Forest G. *Laser Focus World*, **22**, № 4, 23 (1986).
27. Kiernan V. *Laser Focus World*, **33**, № 10, 78 (1977).
28. Grant B. *Photon. Spectra*, **31**, № 10, 46 (1997).
29. Демидова Н.С., Мишин В.А. *Письма в ЖТФ*, **23**, 42 (1977).
30. Борисов С.К., Кузьмина М.А., Мишин В.А. *Докл. III Всерос. научной конф. «Физико-химические процессы при селекции атомов и молекул»* (Звенигород, М.: ЦНИИАтоминформ, 1998, с. 40).
31. Buchanov V.V., Kazaryan M.A., Kalugin M.M., Prokhorov A.M. *Laser Phys.*, **11**, 1332 (2001).
32. Бучанов В.В., Казарян М.А., Калугин М.М., Прохоров А.М. *Докл. V Всерос. (международной) научной конф. «Физико-химические процессы при селекции атомов и молекул»* (Звенигород, М.: ЦНИИАтоминформ, 2001, с. 111).
33. Buchanov V.V., Kazaryan M.A., Kalugin M.M., Prokhorov A.M. *Tech. Digest of Intern. Conf. Lasers'2001* (Tucson, Arizona, 2001, p. 34).
34. Grove R.E. Copper vapour laser overview, Laser program annual report-1979 (LLNL: Livermore, CA), 9-4 to 9-5 (1980).
35. Devis J.L., Shore B.W. Technical and systems highlights, Laser program annual report-1980 (LLNL: Livermore, CA), 10-13 to 10-17, UCRL-5002180 (1981).
36. Warner B.E. *Tech. Digest Opt. Soc. Am.* (Washington, DC, 516-18, 1991).
37. Kearsley A. *Proc. SPIE Int. Soc. Opt. Eng.*, **1225**, 270 (1990).
38. Sabotinov N.V., Vuchkov N.K., Asadjov D.N. *Proc. SPIE Int. Soc. Opt. Eng.*, **1225**, 289 (1990).
39. Bass I.L., Bonanno R.E., Hackel R.P., Hammond P.R. *Appl. Opt.*, **31**, 6993 (1992).
40. Doizi D. In *Pulsed metal vapour lasers* (Dordrecht, Kluwer Academic Publishers, 1996, p. 303).
41. Васильев С.В., Мишин В.А., Шаврова Т.В. *Квантовая электроника*, **24**, 131 (1997).
42. Tabata Y., Hara K., Ueguri S. *Proc. SPIE Int. Soc. Opt. Eng.*, **1628**, 32 (1992).
43. Лябин Н.А., Чурсин А.Д., Угольников С.А., Королева М.Е., Казарян М.А. *Квантовая электроника*, **31**, 191 (2001).
44. Бохан П.А., Бучанов В.В., Закревский Д.Э., Степанов А.Ю., Фатеев Н.В. *Письма в ЖЭТФ*, **71**, 705 (2000).
45. Бохан П.А., Бучанов В.В., Закревский Д.Э., Степанов А.Ю., Фатеев Н.В. *Докл. IV Всерос. (международной) научной конф. «Физико-химические процессы при селекции атомов и молекул»* (Звенигород, М.: ЦНИИАтоминформ, 2000, с. 106).
46. Лябин Н.А. *Оптика атмосферы и океана*, **13**, 258 (2000).
47. Maximov O.P., Mishin V.A., Mashkunov A.G., et al. *Tech. Digest of Intern. Conf. Lasers'97* (New-Orlean, Louisiana, Mc-LEAN, 1997).
48. Бохан П.А., Закревский Д.Э., Кочубей С.А., Степанов А.Ю., Фатеев Н.В. *Квантовая электроника*, **31**, 132 (2001).
49. Мошкунев А.И., Закревский Д.Э., Рахимов Г.Г., Юдин Н.А. *Докл. Всерос. конф. «Физико-химические процессы при селекции атомов и молекул»* (Звенигород, М.: ЦНИИАтоминформ, 2000, с. 102).
50. Anderson S.G. *Laser Focus World*, **37**, No 1, 88 (2001).
51. Kobtsev S.M., Korablev A.V., Kukarin S.V., Sorokin V.B. *Proc. SPIE Int. Soc. Opt. Eng.*, **4353**, 189 (2001).
52. Бохан П.А., Закревский Д.Э., Степанов А.Ю., Фатеев Н.В., Тезисы докл. VI Всерос. (международной) конф. «Физико-химические процессы при селекции атомов и молекул» (Звенигород, М.: ЦНИИАтоминформ, 2001, с. 60).
53. Бохан П.А., Закревский Д.Э., Ким В., Фатеев Н.В. *Тезисы докл. VI Всерос. (международной) конф. «Физико-химические процессы при селекции атомов и молекул»* (Звенигород, М.: ЦНИИАтоминформ, 2001, с. 61).
54. Greenland P.T. *Contemporary Phys.*, **31**, 405 (1990).
55. Бохан П.А., Бучанов В.В., Закревский Д.Э., Степанов А.Ю., Фатеев Н.В. *Докл. Всерос. конф. «Физико-химические процессы при селекции атомов и молекул»* (Звенигород, М.: ЦНИИинформ, 1999, с. 86).
56. Борисов С.К., Кузьмина М.А., Мишин В.А. *Квантовая электроника*, **22**, 722 (1995).
57. Борисов С.К., Мишин В.А. *Труды ИОФАН*, **24**, 3 (1990).
58. Аллен Л., Эвели Дж. *Оптический резонанс и двухуровневые атомы* (М.: Мир, 1978).
59. Salomon E.V. *Spectrochim. Acta*, **45B**, N 1,2, 37 (1990).
60. *Физические величины. Справочник*. Под ред. И.С.Григорьева и Е.З.Мейлихова (М.: Энергоиздат, 1991).
61. Ландау Л.Д., Лифшиц Е.М. *Квантовая механика* (М.: Наука, 1974).
62. Собельман И.И. *Введение в теорию атомных спектров* (М.: Физматлит, 1963).
63. Getty E.T. *Appl. Phys. Lett.*, **7**, 6 (1965).
64. Ханин Я.И. *Динамика квантовых генераторов* (М.: Сов. радио, 1975).
65. Смирнов Б.М. *Возбужденные атомы* (М.: Энергоиздат, 1982).
66. Бохан П.А. *Сб. докл. IV Всерос. (международной) конф. «Физико-химические процессы при селекции атомов и молекул»* (Звенигород, М.: ЦНИИинформ, 1999, с. 115).
67. Бохан П.А., Закревский Д.Э., Степанов А.Ю., Фатеев Н.В. *Сб. докл. V Всерос. (международной) конф. «Физико-химические процессы при селекции атомов и молекул»* (Звенигород, М.: ЦНИИинформ, 2000, с. 106).