

Двухступенчатая фотоионизация палладия

В.И.Держиев, В.М.Дякин, Р.И.Илькаев, Л.А.Михальцов, В.Д.Селемир, И.И.Сидоров, А.Н.Ткачев, С.А.Чаушанский, С.И.Яковленко

В экспериментах по фотоионизации палладия, ориентированных на лазерное разделение изотопов, измерена зависимость эффективности двухступенчатой ионизации (с использованием перехода $4d^{10}^1S_0 - 4d^9 5p^3P_1$, $\lambda = 276.4$ нм) от интенсивности лазерного излучения. Показано, что для эффективной (свыше 50 %) двухступенчатой ионизации палладия излучением с длительностью импульсов 10 нс и частотой повторения 10 кГц требуется средняя интенсивность излучения более 100 Вт/см^2 . Результаты сопоставления расчетных и экспериментальных данных для эффективности двухступенчатой ионизации позволяют оценить сечение фотоионизации состояния $4d^9 5p^3P_1$ ($\sigma_i \approx 10^{-16} \text{ см}^2$).

Ключевые слова: лазерное разделение изотопов, двухступенчатая фотоионизация, сечение фотоионизации.

1. Введение

Перспективность лазерного разделения изотопов (ЛРИ) для получения граммовых количеств редкого изотопа ^{168}Yb продемонстрирована в работах [1–4]. Результаты теоретических и экспериментальных исследований подытожены в обзорах [5–7] (о ранних этапах исследования ЛРИ см., напр., [8, 9]). Естественно попытаться использовать опыт, накопленный при производстве ^{168}Yb , для получения других редких изотопов, требующихся для медицинских применений. Одним из перспективных в рыночном отношении изотопов является ^{102}Pd .

Известно, что для определения возможности промышленной наработки изотопа методом ЛРИ наиболее важна информация как об изотопической структуре селективирующего перехода, так и о сечении фотоионизирующего перехода, поскольку это сечение определяет требуемую мощность ионизирующего лазера. Возможность селективной фотоионизации палладия рассматривалась в работах [10, 11]. В [10] исследовалась двухступенчатая ионизация нечетных изотопов Pd с использованием одного лазера на длине волны $\lambda \approx 276$ нм. В нашей работе рассмотрена схема двухфотонной ионизации палладия, также с использованием одного лазера. Проведены эксперименты и расчеты, позволяющие определить сечение фотоионизации. Полученные нами результаты существенно отличаются от данных [10].

2. О схеме фотоионизации ^{102}Pd

Основным состоянием палладия является $4d^{10}^1S_0$ (энергия $E = 0$) (рис.1). В ближайшие к нему метастабильные состояния конфигурации $4d^9 5s^3D_3$ ($E = 6564 \text{ см}^{-1}$), 3D_2 (7755 см^{-1}), 3D_1 (10094 см^{-1}) и 1D_2 (11722 см^{-1}) дипольные переходы запрещены по четности [12]. При

температуре источника паров до 2000 К (резистивное испарение) населенности метастабильных состояний малы (более 90 % атомов находятся в состоянии 1S_0), поэтому исходным состоянием для схемы фотоионизации должно быть основное состояние палладия 1S_0 .

Ближайшими к основному состоянию уровнями, на которые возможен дипольный переход, являются уровни конфигурации $4d^9 5p$: 3P_1 ($E = 36180.64 \text{ см}^{-1}$, $\lambda = 276.4$ нм), 1P_1 (40838.8 см^{-1} , 244.8 нм) и уровень 3D_1 (40368.73 см^{-1} , 247.6 нм). (Данные по энергиям уровней см. в [13], по вероятностям радиационных переходов – в [14].) Лазером на красителе с удвоением частоты и накачкой от медного лазера можно возбудить только уровень 3P_1 , использованный в качестве первого рабочего уровня схемы ступенчатой ионизации как в работе [10], так и в наших экспериментах. К сожалению, согласно данным работ [13, 15], для фотоионизации из состояния $4d^9 5p^3P_1$ излучением с $\lambda \approx 276.4$ нм трудно ожидать наличия автоионизационных состояний.

Чтобы предсказать необходимую мощность лазера второй ступени, нужно знать сечение фотоионизации из

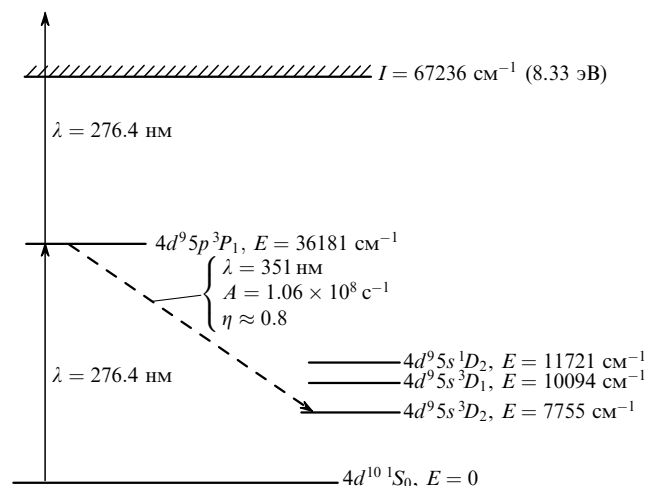


Рис.1. Схема фотоионизации Pd.

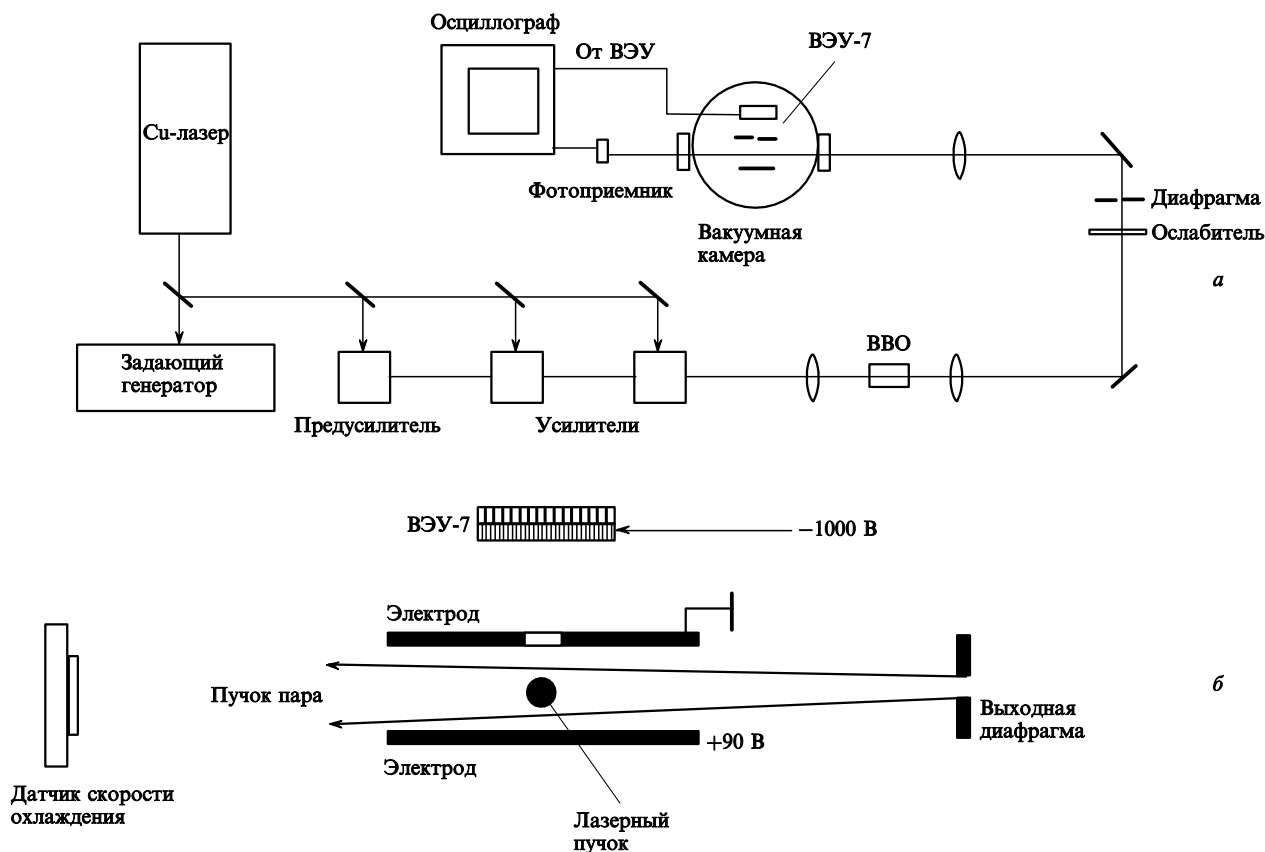


Рис.2. Схемы экспериментальной установки по измерению сечения фотоионизации палладия (а) и внутрикамерного оборудования (б).

возбужденного состояния 3P_1 . Для этого были проведены эксперименты по двухступенчатой фотоионизации палладия мощным лазерным излучением на длине волны $\lambda = 276.4$ нм.

3. Описание экспериментов

На рис.2 показана схема экспериментальной установки для измерения сечения фотоионизации палладия. Она состоит из лазерной системы на парах меди (задающий генератор и три усилителя на базе лазерных трубок типа «Кристалл LT-40CU»), одноканальной лазерной системы на красителе, а также вакуумной камеры с испарителем и ионным детектором.

Излучение лазерной системы на парах меди с выходной мощностью около 40 Вт на длине волны 510 нм использовалось для накачки кювет лазерной системы на красителе. Длительность импульсов накачки по полувывсоте составляла 20 нс, частота следования лазерных импульсов равнялась 10 кГц. Накачка кювет осуществлялась поперечным способом.

В канале лазерной системы на красителе (использовался родамин 110) формировалось узкополосное перестраиваемое по частоте в окрестности длины волны 552.78 нм лазерное излучение, которое после удвоения частоты использовалось для возбуждения и фотоионизации изотопов палладия. Задающий генератор был построен на базе промышленного лазера ЛЖИ-504 с увеличенной базой внутррезонаторного эталона Фабри-Перо, что позволило уменьшить ширину линии генерации до 700 МГц при средней мощности на выходе ге-

нератора 150 мВт. Без эталона ширина спектра генерации составляла 15 ГГц. Излучение от генератора усиливалось с помощью предусилителя и двух усилителей до средней мощности около 10 Вт.

Длина волны лазерного излучения измерялась с помощью четырехканального измерителя длин волн, разработанного в ИОФ РАН, с точностью ± 0.00001 нм. Абсолютная калибровка измерителя длин волн осуществлялась излучением стабилизированного He-Ne-лазера. Погрешность спектральных измерений в экспериментах составляла ± 0.00002 нм. Поддержание частоты лазерного излучения при ее уходах, вызванных изменением температуры компонентов лазерной системы и давления окружающей среды, осуществлялось вручную путем периодической подстройки угла наклона внутррезонаторного эталона.

УФ излучение с длиной волны, необходимой для возбуждения и фотоионизации изотопов палладия, формировалось на выходе лазерного канала путем удвоения частоты с помощью нелинейного кристалла ВВО длиной 10 мм с апертурой 4×5 мм. Лазерный пучок фокусировался в кристалл линзой с фокусным расстоянием 300 мм, вторая линза, расположенная за кристаллом, компенсировала астигматизм второй гармоники и коллимировала пучок УФ излучения. Эффективность преобразования составляла 20%. Средняя мощность УФ излучения с примерно гауссовым распределением интенсивности по сечению пучка достигала 1.6 Вт. При большей мощности распределение в пучке заметно ухудшалось.

Пучок УФ излучения пропускался через калиброванную диафрагму, вырезающую центральную однородную

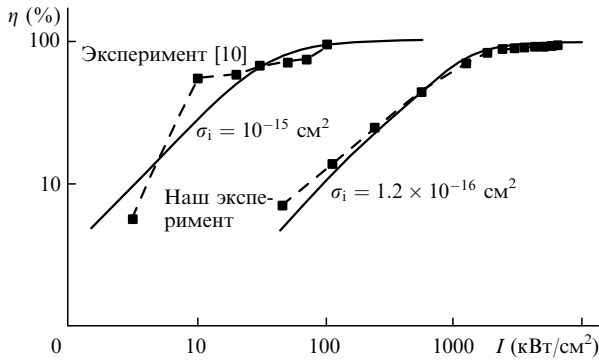


Рис.3. Теоретические зависимости эффективности ионизации от интенсивности лазерного излучения в импульсе (сплошные кривые), экспериментальные точки – значения фототока, нормированные на теоретические кривые при максимальных экспериментальных интенсивностях.

часть пучка, калиброванный 12-ступенчатый нейтральный ослабитель, а затем вводился в вакуумную камеру. Плотность средней мощности лазерного излучения в зоне взаимодействия с паром была сравнительно мала и составляла порядка 10 Вт/см². В случае использования фокусирующей линзы плотность потока в зоне взаимодействия возрастала примерно в 50 – 100 раз, а размер пучка в ней определялся эффективным диаметром перетяжки в фокусе линзы (0.2 мм).

В экспериментах с палладием использовался резистивный молибденовый испаритель. Атомный пучок формировался системой диафрагм. Угловая расходимость атомного пучка не превышала 0.1 рад, что позволило уменьшить доплеровскую ширину атомных линий поглощения палладия до 300 МГц (по сравнению с 2.7 ГГц в неколлимированном атомном паре). Плотность атомов в зоне взаимодействия была равна примерно 10^9 см^{-3} . Плотность пара оценивалась по скорости осаждения атомов палладия на кристалл кварца (датчик скорости осаждения пленки фирмы INFICON), установленный в пучке пара на расстоянии 55 мм от области взаимодействия. Вакуум в камере поддерживался на уровне 10^{-5} Тор при безмасляной откачке.

Спектр излучения второй гармоники перекрывал изотопическую структуру палладия, поэтому фотоионизация была неселективной – в зоне взаимодействия появлялись ионы всех изотопов палладия. Ионы, появляющиеся в зоне взаимодействия в течение импульса лазерного излучения, вытягивались из плазмы электрическим полем за время, меньшее периода следования лазерных импульсов, и через отверстие в электроде попадали на вход электронного умножителя ВЭУ-7. Сигнал ионного тока с ВЭУ регистрировался с помощью цифрового осциллографа Tektronix TDS 3034. Контроль средней мощности УФ излучения проводился перед входом в камеру. На рис.3 показана кривая насыщения ионного тока, характерная для наших экспериментов.

4. Расчеты эффективности двухступенчатой ионизации

Если возбуждение и ионизация состояния 3P_1 осуществляются одним лазером с однородным по сечению пучка распределением интенсивности, то число атомов, ионизованных за импульс, можно определить на основе следующих уравнений баланса населенностей:

$$\frac{dN_0}{dt} = N_1[A + B_0f(t)] - N_0B_0f(t),$$

$$\frac{dN_1}{dt} = -N_1[A + \gamma + (B_0 + B_1)f(t)] + N_0B_0f(t), \quad (1)$$

$$\frac{dN_i}{dt} = N_1B_1f(t).$$

Здесь N_0 , N_1 – населенности основного (0) и возбужденного (1) состояний; N_i – плотность ионов; A – скорость спонтанного перехода $1 \rightarrow 0$; γ – суммарная скорость ухода атомов из возбужденного состояния в нижележащие метастабильные состояния, не учитываемые в модели; $B_0 = I_0\sigma_0/\hbar\omega$ – скорость индуцированного лазерным излучением перехода $0 \rightarrow 1$; $B_1 = I_0\sigma_i/\hbar\omega$ – скорость ионизации возбужденного состояния лазерным излучением; I_0 – средняя интенсивность лазерного излучения в импульсе; σ_0 , σ_i – сечения фотовозбуждения и фотоионизации соответственно; $f(t)$ – функция, описывающая зависимость лазерного импульса от времени; $\hbar\omega$ – энергия лазерного кванта.

В конкретных расчетах временная зависимость лазерного импульса бралась в виде

$$f(t) = \frac{1}{\sqrt{\pi}} \exp \left[- \left(\frac{t - 2\tau}{\tau} \right)^2 \right].$$

Значения параметров, фигурирующих в задаче, были следующими: $\tau = 10$ нс, $\hbar\omega = 4.5$ эВ, $A = 1.03 \times 10^7 \text{ с}^{-1}$, $\gamma = 1.28 \times 10^8 \text{ с}^{-1}$, $\sigma_0 = 2 \times 10^{-13} \text{ см}^2$. Величина $I_0\sigma_i$ варьировалась. В начальный момент $t = 0$ полагалось, что все атомы находятся в основном состоянии. На основании решения системы дифференциальных уравнений (1) определялась эффективность ионизации $\eta = N_i(\infty)/N_0(0)$.

Расчетные и экспериментальные данные приведены на рис.3. Видно, что экспериментальные данные работы [10] можно описать теоретически, если предположить, что сечение фотоионизации очень велико ($\sigma_i \sim 10^{-15} \text{ см}^2$). Такие значения не характерны для сечений фотоионизации. Вблизи границы ионизации сечения фотоионизации обычно составляют порядка 10^{-17} см^2 . Мы затрудняемся объяснить причины, по которым насыщение зависимости эффективности ионизации в работе [10] наступает при столь низкой ($I_0 \approx 10 - 40 \text{ кВт/см}^2$) интенсивности излучения. Данные наших экспериментов хорошо описываются теорией при $\sigma_i = 1.2 \times 10^{-16} \text{ см}^2$. Это значение представляется более естественным.

5. Выводы

Из представленных результатов следует, что для эффективной (свыше 50 %) ионизации состояния палладия $4d^95p^3P_1$ излучением с длиной волны $\lambda = 276.4$ нм, длительностью импульсов 10 нс и частотой повторения 10 кГц требуется средняя интенсивность излучения более 200 Вт/см^2 . Расчеты показывают, что для насыщения первого перехода $4d^{10}1S_0 - 4d^95p^3P_1$ достаточно сравнительно небольшой интенсивности (0.1 Вт/см^2). Выяснение вопроса об изотопической селективности использованной схемы двухступенчатой ионизации палладия требует отдельного исследования.

1. Держиев В.И., Кузнецов В.А., Михальцов Л.А., Мушта В.М., Сапожков А.Ю., Ткачев А.Н., Чаушанский С.А., Яковленко С.И. *Квантовая электроника*, **23**, 771 (1996).
2. Derzhiev V.I., Kuznetsov V.A., Mikhail'tsov L.A., Mushta V.M., Sapozhkov A.Yu., Tkachev A.N., Chaushanskii S.A., Yakovlenko S.I. *Proc. Int. Conf. Lasers'96* (Portland Or, STS Press, McLean, VA, 1997, p. 441-448).
3. Держиев В.И., Кострица С.А., Кузнецов В.А., Михальцов Л.А., Мушта В.М., Сапожков А.Ю., Ткачев А.Н., Чаушанский С.А., Яковленко С.И. *Квантовая электроника*, **25**, 287 (1998).
4. Derzhiev V.I., Kuznetsov V.A., Mikhail'tsov L.A., Mushta V.M., Sapozhkov A.Yu., Tkachev A.N., Chaushanskii S.A. *Proc. SPIE Int. Soc. Opt. Eng.*, **3403**, 242 (1998).
5. Яковленко С.И. *Квантовая электроника*, **25**, 971 (1998).
6. Yakovlenko S.I. *Laser and Particle Beams*, **16**, 541 (1998).
7. Яковленко С.И. *Изв. вузов. Сер. Физика*, **42**, № 8, 82 (1999).
8. Letokhov V.S., Mishin V.I., Puretzky A.A. *Prog. Quantum Electron.*, **5**, 139 (1977).
9. Карлов Н.В., Крынецкий Б.Б., Мишин В.А., Прохоров А.М. *УФН*, **127**, 593 (1979).
10. Yamaguchi H., Sasao N., Nobuyuki S. *Proc. Int. Symp. Advanced Nuclear Energy Research* (Oarai, Ibaraki, Japan, February 15-16, 1989) (JAERI, 1990, pp.129-134).
11. Sasao N., Yamaguchi H. Laser isotope separation apparatus. US Patent US005110562A, filed Feb. 28, 1990. Date of Patent May 5, 1992.
12. Собельман И.И. *Введение в теорию атомных спектров* (М.: Наука, 1977).
13. Moore C.E. *Atomic energy levels* (NBS Circ. 467, 1958, vol. 3).
14. Корлисс Ч., Бозман У. *Вероятности переходов и силы осцилляторов 70 элементов* (М.: Мир, 1968).
15. Karamatskos N., et al. *Phys. Lett.*, **102A**, 409 (1984).