

# Изотопически-селективная фотоионизация палладия

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

Экспериментально исследована схема изотопически-селективной фотоионизации палладия. Достигнуто существенное обогащение различных изотопов палладия ( $^{102}\text{Pd}$ ,  $^{104}\text{Pd}$ ,  $^{105}\text{Pd}$ ). На основе экспериментальных данных получена оценка для сверхтонкой и изотопической структур уровня  $4d^9 5p^3 P_1$ , согласно которой определены требования к лазерному излучению и доплеровской ширине линии атомов, обеспечивающие высокую селективность фотоионизации. Для получения высокообогащенного (свыше 50%) изотопа  $^{102}$  спектральная ширина линии лазера (после удвоения частоты) должна составлять 60–80 МГц, стабильность частоты лазера (до удвоения) должна быть равна 20–40 МГц, ширина атомных линий не должна превышать 100 МГц.

**Ключевые слова:** лазерное разделение изотопов, двухступенчатая фотоионизация, палладий.

## 1. Введение

Данная работа является продолжением исследований [1], направленных на получение весовых количеств  $^{102}\text{Pd}$  методом лазерного разделения изотопов (ЛРЗ). Перспективность этого метода для получения граммовых количеств редкого изотопа продемонстрирована в работах [2–4] на примере  $^{168}\text{Yb}$ . При малом исходном содержании целевого изотопа резко обостряются трудности, связанные с обеспечением высокой селективности фотоионизации в сравнительно большом объеме и эффективной экстракции ионов (см. обзоры [5–7]). Они имеют место и для  $^{102}\text{Pd}$ , содержание которого в естественной смеси изотопов составляет 1.02%. Помимо этого при ЛРЗ палладия возникает ряд существенных дополнительных трудностей.

Во-первых, спектр переходов оптических электронов палладия предполагает обязательное использование УФ излучения при возбуждении первого рабочего уровня схемы селективной фотоионизации, в связи с чем возникает необходимость в удвоении частоты лазеров, что существенно усложняет технологическую цепочку. Во-вторых, характерные изотопические сдвиги уровней палладия примерно в 2–2.5 раза меньше, чем у иттербия. Это повышает требования к спектру лазерного излучения и к коллимации атомного пучка. В-третьих, температура испарения палладия выше, чем у иттербия, что приводит к существенному усложнению конструкции источника атомных паров.

Для выявления принципиальной возможности промышленного производства весовых количеств палладия-102 необходимо исследовать схему изотопически-селективной фотоионизации. Возможность селективной фото-

ионизации палладия рассматривалась в [8,9], однако получить высокую изотопическую селективность в этих работах не удалось. В [10] для улучшения селективности фотоионизации было предложено использовать эффект Зеемана. Настоящая работа посвящена исследованию предложенной в [10] схемы двухступенчатой селективной фотоионизации палладия через зеемановски-расщепленные состояния. Полученные нами результаты существенно отличаются от данных [8].

## 2. Экспериментальная установка

Использовалась схема двухступенчатой фотоионизации палладия, представленная на рис.1 (подробнее см. [10]). На первой ступени лазером на красителе с удвоением частоты и накачкой от медного лазера возбуждался уровень палладия  $4d^9 5p^3 P_1$  (энергия  $E = 36180.64 \text{ см}^{-1}$ ,  $\lambda = 276.4 \text{ нм}$ ), использовавшийся в качестве первого рабочего уровня схемы как в [8], так и в наших экспериментах [1]. На второй ступени вторым лазером на красителе с удвоением частоты ( $\lambda \sim 291 \text{ нм}$ ) проводилась ионизация возбужденных атомов напрямую в континуум.

Экспериментальная установка для исследования процесса селективной фотоионизации изотопов палладия

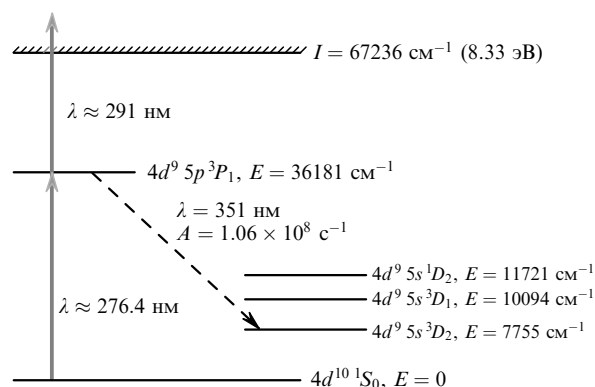


Рис.1. Схема фотоионизации Pd.

В.И.Держиев, В.М.Дякин, Р.И.Илькаев, Л.А.Михальцов, А.Ю.Сапожков, В.Д.Селемир, И.И.Сидоров, А.Н.Ткачев, С.А.Чаушанский, С.И.Яковленко. Институт общей физики им. А.М.Прохорова РАН, Россия, 119991 Москва, ул. Вавилова, 38

Поступила в редакцию 5 июля 2002 г.

состояла из двухканальной лазерной системы на парах меди, двухканальной лазерной системы на красителе, испарителя и масс-спектрометра (рис.2). Лазерная система на парах меди включала в себя задающий генератор и пять усилителей на базе лазерных трубок типа «Кристалл LT-40CU». Эта система обеспечивала суммарную мощность излучения 50 Вт на длине волны 510 нм при длительности лазерных импульсов по полувысоте 20 нс и частоте следования 10 кГц.

Накачка кювет лазеров на красителях осуществлялась поперечным способом. В первом канале лазерной системы на красителе (родамин 110) формировалось узкополосное, перестраиваемое по частоте лазерное излучение в окрестности длины волны 552.78 нм, которое после удвоения частоты использовалось для возбуждения 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 генератора 150 мВт.

Для того чтобы сузить спектр лазерного излучения первого канала и устранить уширение спектра, возникающее при последующем удвоении частоты, применялись два узкополосных спектральных фильтра (рис.2), в качестве которых использовались конфокальные интер-

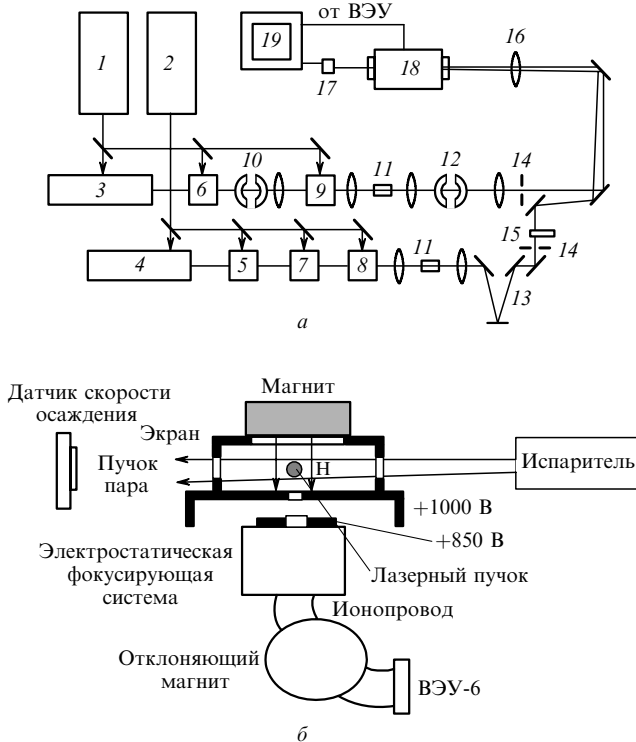


Рис.2. Схемы экспериментальной установки по селективной фотоионизации изотопов палладия (а) и зондированию атомного пучка в масс-спектрометре (б): 1, 2 – лазерная система на парах меди; 3, 4 – задающий генератор первого и второго каналов лазерной системы на красителе; 5, 6 – предварительные усилители; 7, 8, 9 – усилители мощности на красителе; 10 – узкополосный спектральный фильтр; 11 – нелинейный кристалл для удвоения частоты; 12 – УФ узкополосный спектральный фильтр; 13 – оптическая линия задержки; 14 – калиброванная диафрагма; 15 – многоступенчатый ослабитель; 16 – фокусирующая линза; 17 – УФ фотодиод (расположен в вакуумной камере); 18 – масс-спектрометр; 19 – цифровой четырехканальный осциллограф Tektronix TDS 3034.

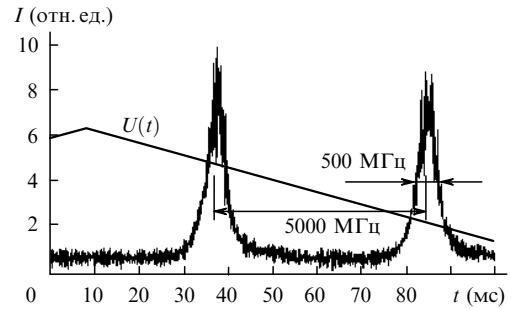


Рис.3. Спектр лазерного излучения первого канала после удвоения частоты, полученный с помощью сканирующего конфокального интерферометра. Приведены зависимости напряжения развертки и средней интенсивности прошедшего через интерферометр излучения от времени, а также ширина спектрального пика по полувысоте и расстояние между пиками, соответствующее области дисперсии интерферометра.

ферометры с пьезоэлектрической подстройкой. Один из них устанавливался за предусилителем и работал в видимой области спектра. При базе интерферометра 3 см (область дисперсии 2.5 ГГц) и резкости 15 расчетная ширина аппаратной функции фильтра была равна 170 МГц. Реальная ширина спектра лазерного излучения на выходе фильтра, измеренная с помощью сканирующего конфокального интерферометра, была несколько больше, но не превышала 250 МГц (здесь и ниже имеется в виду ширина спектра по полувысоте, измеренная путем усреднения по  $10^3 - 10^4$  лазерным импульсам). Снижение мощности компенсировалось затем с помощью усилителя. После удвоения частоты ширина спектра увеличивалась примерно в два раза (рис.3)

Второй интерферометр устанавливался за нелинейным кристаллом и работал в УФ области спектра. Интерферометр имел базу 1.5 см (область дисперсии 5 ГГц) и расчетную ширину аппаратной функции 64 МГц при резкости 78. Реальная ширина спектра выходного УФ излучения была больше (130 МГц), что связано с нестационарным характером многолучевой интерференции в импульсном режиме [11, 12].

Для удвоения частоты в первом канале использовался нелинейный кристалл ВВО длиной 7 мм. Средняя мощность узкополосного УФ излучения на выходе первого канала составляла 5–7 мВт при эффективности преобразования во вторую гармонику до 10%.

Длина волны лазерного излучения контролировалась только в видимом диапазоне и измерялась с помощью четырехканального измерителя длин волн, разработанного в ИОФ РАН, с погрешностью  $\pm 0.00001$  нм. Абсолютная калибровка измерителя длин волн осуществлялась излучением стабилизированного He–Ne-лазера. Погрешность спектральных измерений длины волны в экспериментах составляла  $\pm 0.00002$  нм. Этому значению в УФ диапазоне (на длине волны  $\sim 276$  нм) соответствует погрешность по частоте  $\pm 40$  МГц.

Уход частоты лазерного излучения, вызванный изменениями температуры установки и давления окружающей среды, периодически компенсировался путем изменения вручную угла наклона внутррезонаторного эталона и подстройки длин резонаторов конфокальных интерферометров на максимум пропускания с помощью пьезопроводов.

В задающем генераторе второго канала, аналогичном генератору первого канала, внутррезонаторный

эталон Фабри – Перо не использовался, поэтому ширина спектра лазерного излучения на его выходе достигала 15 ГГц. Отстройка длины волны УФ излучения второго канала, использовавшегося для фотоионизации, от резонансного значения (276.39 нм) возбуждающего перехода была равна 20–30 нм. Удвоение частоты проводилось с помощью кристалла ВВО длиной 10 мм и апертурой  $4 \times 5$  мм. Эффективность преобразования составляла около 20 %, средняя мощность УФ излучения на выходе второго канала достигала 0.5–0.7 Вт при ширине спектра УФ излучения по полувысоте около 30 ГГц.

Формируемое двухканальной лазерной системой на красителе УФ излучение, имеющее вид двух коллимированных пучков, пропускалось через калиброванные диафрагмы и вводилось в масс-спектрометр (см. рис.2). Оба лазерных пучка сводились зеркалами ввода так, чтобы в области взаимодействия с атомным пучком площади сечения пучков совпадали. Синхронизм прихода лазерных импульсов в зону взаимодействия с атомами пара обеспечивался с помощью оптической линии задержки с точностью не хуже 1 нс. Чтобы исключить влияние насыщения селективирующего перехода на ширину линии поглощения, лазерное излучение первого канала в экспериментах дополнительно ослаблялось с помощью 12-ступенчатого нейтрального фильтра. Основные эксперименты выполнялись при средней мощности излучения первого канала  $\sim 10^{-5}$  Вт. В отсутствие ослабителя плотности мощности лазерного излучения в зоне взаимодействия составляли порядка  $10^2$  Вт/см<sup>2</sup> для первого канала и  $10^4$  Вт/см<sup>2</sup> для второго. В случае использования фокусирующей линзы плотности потоков в зоне взаимодействия возрастали примерно в 100 раз.

В описываемой серии экспериментов с палладием использовался резистивный графитовый испаритель; атомный пучок формировался системой диафрагм. Угловая расходимость атомного пучка не превышала 0.1 рад, чему соответствует доплеровская ширина атомных линий поглощения палладия 300 МГц. Плотность пара оценивалась по скорости осаждения атомов палладия на кристалл кварца (датчик скорости осаждения пленки изготовлен фирмой INFICON), установленный в пучке пара на расстоянии 55 мм от области взаимодействия. Плотность атомов в зоне взаимодействия составляла примерно  $10^9$  см<sup>-3</sup>. Вакуум в камере поддерживался на уровне  $10^{-5}$  Тор при безмасляной откачке.

В экспериментах использовался масс-спектрометр с электростатической фокусировкой и магнитной отклоняющей системой. Развертка по массам осуществлялась с помощью пилообразного напряжения, подаваемого на электроды фокусирующей системы. Предварительно масс-спектрометр калибровался по изотопам иттербия и цезия. Регистрация масс-спектра осуществлялась с помощью четырехканального осциллографа.

Для экспериментов по обогащению изотопов палладия-102 и других в магнитном поле использовался специально изготовленный постоянный магнит, обеспечивающий в зоне фотоионизации магнитное поле 2–3 кГс.

### 3. Масс-спектры обогащенных изотопов

В экспериментах по снятию масс-спектров палладия частота лазерного излучения первого канала перестраивалась с шагом примерно 20 МГц (в УФ диапазоне – 40 МГц) в области регистрируемого ионного сигнала

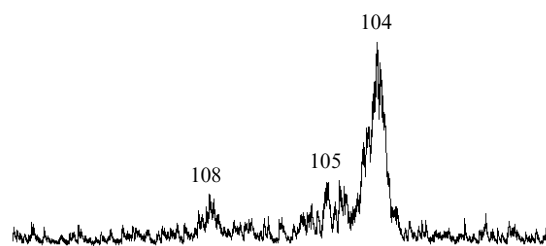


Рис.4. Характерная масс-спектрограмма с преимущественным обогащением изотопом палладия 104. Массовые числа изотопов указаны у пиков спектрограммы. Содержание <sup>104</sup>Pd в масс-спектре составляет 67 %.

( $\sim 1$  ГГц). Длина волны излучения второго канала поддерживалась неизменной (582 нм до удвоения). Одновременно с каждым шагом регистрировалась соответствующая масс-спектрограмма. Так как сечение фотоионизации палладия оказалось достаточно малым [1], а плотность атомного пара довольно низкой, то для повышения отношения сигнал/шум регистрация масс-спектров проводилась не в пиковом режиме, а в режиме накопления.

Следует отметить, что оба рабочих перехода в наших экспериментах не были насыщены, поэтому флуктуации мощности лазерного излучения приводили к достаточно сильному (50 %) разбросу значений ионного тока масс-спектрометра. Спектральное разрешение в наших экспериментах было ограничено значением 400 МГц и определялось доплеровской шириной атомных линий, шириной линии лазера первого канала, погрешностями измерения длины волны и неконтролируемым уходом частоты УФ лазерного излучения за время одного измерения (примерно 20 с).

Характерные масс-спектрограммы с преимущественным обогащением изотопами 104 и 105, полученные нами в отсутствие магнитного поля в зоне фотоионизации, приведены на рис.4 и 5. В то же время максимальное содержание изотопа 102 в масс-спектрах, полученное в наших экспериментах в отсутствие магнитного поля, не превышало 3 %–4 %.

Включение магнитного поля в зоне селективной фотоионизации позволило резко увеличить содержание изотопа 102 в составе ионов, полученных в результате фотоионизации. В экспериментах по выделению <sup>102</sup>Pd частота лазера первого канала настраивалась по максимальному обогащению этого изотопа. Линейная поляризация излучения лазера первого канала в зоне фотоионизации была коллинеарна напряженности магнит-

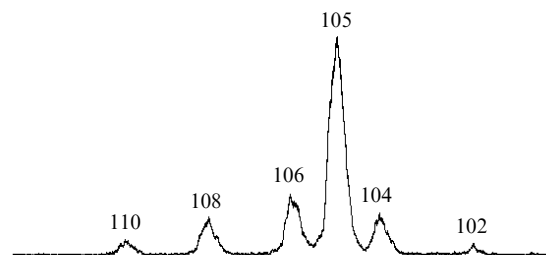


Рис.5. Характерная масс-спектрограмма с преимущественным обогащением изотопом палладия 105. Массовые числа изотопов указаны у пиков спектрограммы. Содержание <sup>105</sup>Pd в масс-спектре составляет 60 %.

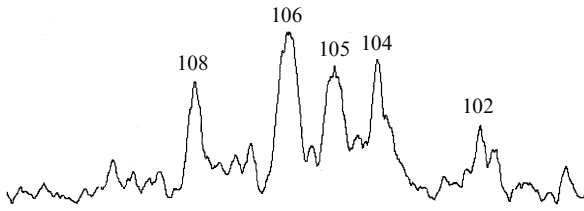


Рис.6. Характерная масс-спектрограмма с преимущественным обогащением изотопом палладия-102, полученная в присутствии магнитного поля 2400 Гс. Массовые числа изотопов указаны у пиков спектрограммы, содержание  $^{102}\text{Pd}$  в масс-спектре составляет 12 %.

ного поля. Среднее значение напряженности магнитного поля в зоне селективной фотоионизации оценивалось по зеемановским сдвигам частот переходов в  $^{105}\text{Pd}$  и составляло  $2.4 \pm 0.5$  кГс. Характерная масс-спектрограмма, полученная при выделении  $^{102}\text{Pd}$  в магнитном поле, приведена на рис.6.

В экспериментах по выделению  $^{102}\text{Pd}$  в магнитном поле содержание этого изотопа в масс-спектрах достигало 10 % – 18 % (по сравнению с естественным содержанием 1 %). Более высокого обогащения (по данным [10] в условиях наших экспериментов в составе фототока можно было ожидать содержания  $^{102}\text{Pd}$  до 80 %) нам получить не удалось из-за недостаточного оптического спектрального разрешения.

#### 4. Об изотопической структуре перехода $4d^{10} 1S_0 - 4d^9 5p^3 P_1$

Эксперименты по измерению спектров изотопов при сканировании линии возбуждения  $4d^{10} 1S_0 - 4d^9 5p^3 P_1$  показали, что наблюдаемая картина спектров не согласуется с результатами вычислений работы [10]. Это связано, по-видимому, с тем, что использованные в [10] данные работы [8] о сверхтонкой и изотопической структурах уровня  $4d^9 5p^3 P_1$  не соответствуют действительности. Попытаемся поэтому хотя бы грубо восстановить изотопическую структуру уровня  $4d^9 5p^3 P_1$  на основе наших экспериментальных данных.

Несмотря на то что результаты наших экспериментов имеют довольно значительный разброс как от серии к серии, так и внутри каждой из экспериментальных серий, анализ всей совокупности экспериментальных данных позволяет надежно сделать следующие выводы:

1. Диапазон отстроек частот лазера первой ступени, при которых фототок значительно больше уровня шумов, не превышает 1 ГГц.

2. При сканировании длины волны лазера первой ступени из длинноволновой области в коротковолновую изотоп 105 появляется в масс-спектрах раньше, чем изотоп 102. При сканировании в обратном направлении изотоп 110 появляется в спектрах практически одновременно с изотопом 105.

3. Длина волны лазера первой ступени (до удвоения), соответствующая максимальному содержанию изотопа 102 в фототоке (в присутствии магнитного поля),  $\lambda_1/2 = 552.78068$  нм.

4. Длина волны лазера первой ступени (до удвоения), при которой содержания изотопов 106 и 108 в фототоке становятся одинаковыми,  $\lambda_2/2 = 552.78100$  нм.

Из первого вывода следует, что данные об изотопических сдвигах для перехода  $1S_0 - 3P_1$ , приведенные в работе

[8], неверны, поскольку диапазон отстроек частот, в котором по данным [8] должен наблюдаться значительный фототок, как минимум в два раза шире, чем полученный в эксперименте. Из второго вывода следует, что неверны также данные [13, 14] по сверхтонкой структуре (СТС) уровня  $3P_1$ . Если предположить, что знаки коэффициентов  $A$  и  $B$  для СТС уровня  $3P_1$  в этих работах перепутаны, то согласие с экспериментом резко улучшится. Поэтому далее мы полагаем, что  $A > 0$ , а  $B < 0$ . Третий и четвертый выводы позволяют примерно восстановить действительную изотопическую структуру уровня  $3P_1$ .

Для оценки изотопических сдвигов мы воспользовались данными работ [15–17] об относительных величинах сдвигов в линиях палладия. При получении оценки мы полагали, что  $\lambda_1$  соответствует линии изотопа 102, а  $\lambda_2$  – середине между линиями изотопов 106 и 108. Отметим, что полученные в результате изотопические сдвиги являются оценкой сверху, поскольку максимальное обогащение изотопа 102 в наших экспериментах могло достигаться не в центре, а на крыле линии (возможно, далеко). Полученная в результате оценки изотопическая структура уровня  $3P_1$  приведена на рис.7. Отстройка частот изотопов 102 и 104 оказалась равной 220 МГц, что в 2.2 раза меньше указанной в литературе. Это обстоятельство приводит к резкому ужесточению требований к спектру лазера первой ступени и к доплеровской ширине линии поглощения атомов, находящихся в зоне фотоионизации.

#### 5. Расчеты селективности фотоионизации по экспериментальным данным

Для получения реальной информации о параметрах, достижимых в схеме фотоионизации  $1S_0 - 3P_1$  – континуум, описанные в работе [10] расчеты были повторены для полученной оценки изотопической структуры уровня  $3P_1$  (рис.7).

Некоторые из результатов расчетов спектральной зависимости фототока (в отсутствие магнитного поля и в магнитном поле 2000 Гс) приведены на рис.8. Как и в случае расчетов [10], в отсутствие магнитного поля получить требуемое обогащение изотопом 102 невозможно из-за наложения на его линию линии изотопа 105. В магнитном поле 2000 Гс при достаточно узких линиях лазера первой ступени и атомных линиях большое обогащение (свыше 50 %) можно получить в диапазоне длин волн лазера первой ступени  $\lambda_1/2 = 552.78066 - 552.78072$  нм.

Анализ всей совокупности расчетов показал, что для получения высокого обогащения изотопом 102 (более 50 %) требования к спектрам лазера и ширине атомных линий должны быть значительно более жесткими, чем в работе [10]. Ширина линии лазера (после удвоения) должна составлять 60–80 МГц, стабильность поддержания частоты лазера (до удвоения) должна быть 20–40 МГц,

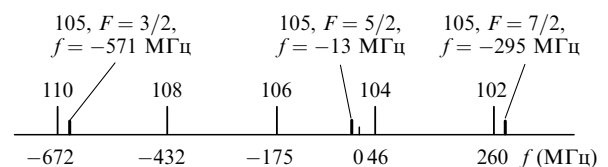


Рис.7. Оценка для изотопических сдвигов и сверхтонкой структуры уровня  $4d^9 5p^3 P_1$  изотопов Pd I, полученная по экспериментальным данным.

ширина атомных линий не должна превышать 150 МГц. Пиковая интенсивность лазера второго канала при этом остается прежней (~1 МВт/см<sup>2</sup>), а пиковая интенсивность первого лазера может быть снижена примерно в два раза (до 15 Вт/см<sup>2</sup>).

### 6. Анализ возможностей схемы селективной фотоионизации с уровня $4d^9 5s^3 D_2$

Результаты, представленные на рис.8 для случая магнитного поля, демонстрируют принципиальную возможность высокого обогащения изотопом 102. Однако поскольку высокое обогащение достигается при существенно меньших ширинах лазерной и атомной линий, чем предполагалось ранее по данным литературы, были рассмотрены возможности использования схем селективной фотоионизации с метастабильного уровня  $4d^9 5s^3 D_2$ .

В статьях [13, 14, 16] имеются данные о СТС уровня  $4d^9 5s^3 D_2$ , а также уровней  $^3P_1$ ,  $^3P_2$ ,  $^3F_3$ ,  $^3D_3$  конфигурации  $4d^9 5p$ , на которые возможен переход с уровня  $5s^3 D_2$  (табл.1 и 2). Данные о СТС уровней  $^3F_2$ ,  $^3D_2$ ,  $^3D_1$ ,  $^1F_3$ ,  $^1D_2$ ,  $^1P_1$  в литературе найти не удалось.

Данные о изотопических сдвигах для переходов

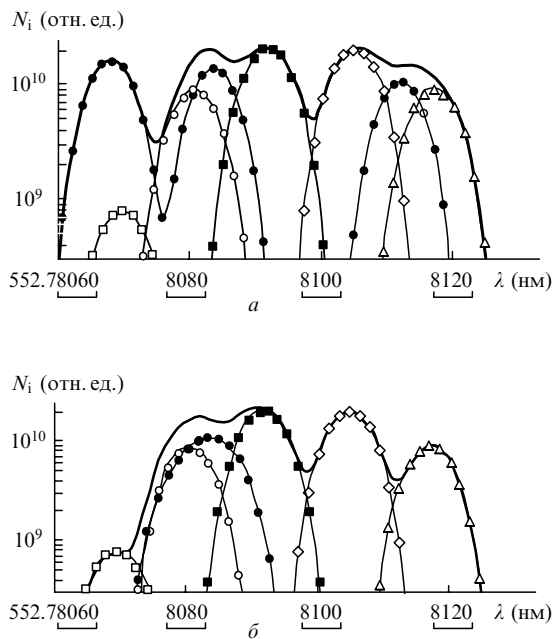


Рис.8. Изотопический состав ионов в зависимости от длины волны (до удвоения частоты; на оси абсцисс отложены последние 4 цифры) первого (селектирующего) лазера в отсутствие магнитного поля (а) и в магнитном поле 2000 Гс (б) при пиковой интенсивности первого лазера 500 Вт/см<sup>2</sup>, второго лазера – 50 кВт/см<sup>2</sup>. Ширина атомных линий составляет 100 МГц, ширина линии лазера – 60 МГц, поляризация излучения линейная. Сплошная жирная кривая соответствует полному числу ионов, образующихся в зоне фотоионизации за импульс, кривые с точками – ионам изотопов палладия с массовыми числами 102 (□), 104 (○), 105 (●), 106 (■), 108 (◇), 110 (△).

Табл.1. Параметры СТС некоторых уровней  $^{105}\text{Pd}$ .

| Уровень         | A (МГц) | B (МГц) |
|-----------------|---------|---------|
| $4d^9 5s^3 D_2$ | 66      | -400    |
| $4d^9 5p^3 P_1$ | 133     | -150    |
| $4d^9 5p^3 P_2$ | -81     | -312    |
| $4d^9 5p^3 D_3$ | -120    | -660    |
| $4d^9 5p^3 F_3$ | -112    | -536    |

Табл.2. Отстройки частот компонент СТС уровней  $^{105}\text{Pd}$  от центра тяжести (в мегагерцах).

| Уровень         | F = 1/2 | F = 3/2 | F = 5/2 | F = 7/2 | F = 9/2 | F = 11/2 |
|-----------------|---------|---------|---------|---------|---------|----------|
| $4d^9 5s^3 D_2$ | -742    | -463    | -98     | 203     | 230     | -        |
| $4d^9 5p^3 P_1$ | -       | -571    | -13     | 295     | -       | -        |
| $4d^9 5p^3 P_2$ | 349     | 368     | 321     | 92      | -483    | -        |
| $4d^9 5p^3 D_3$ | 896     | 895     | 826     | 590     | 50      | -973     |
| $4d^9 5p^3 F_3$ | 873     | 850     | 758     | 515     | 12      | -899     |

между приведенными в табл.2 уровнями в литературе отсутствуют, однако анализ сдвигов между конфигурациями  $4d^9 5s - 4d^9 5p$  для других переходов показывает, что сдвиги слабо зависят от термов. Это позволяет предположить, что и для рассматриваемых линий сдвиги будут примерно такими же. Для того чтобы провести оценки, мы приняли в соответствии с [15–17], что линии изотопов имеют следующие отстройки:  $^{102}\text{Pd} - 600$  МГц,  $^{104}\text{Pd} - 110$  МГц,  $^{105}\text{Pd}$  (центр тяжести СТС) – 0,  $^{106}\text{Pd} - 366$  МГц,  $^{108}\text{Pd} - 853$  МГц,  $^{110}\text{Pd} - 1293$  МГц.

В табл.3 приведены полученные в принятом предположении структуры линий для переходов между рассматриваемыми уровнями. Жирным шрифтом отмечены те линии, которые отстоят от линии изотопа 102 (отстройка 600 МГц) не более чем на 300 МГц. Из табл.3 видно, что на приведенных переходах невозможно обеспечить хорошую селективность фотоионизации изотопа 102. Поскольку для перехода  $^1S_0 - ^3P_1$  включение магнитного поля резко улучшало ситуацию (линии изотопа 105 в магнитном поле раздвигались), естественно рассмотреть возможность такого решения и для уже перечисленных линий.

Из тех линий, данные о СТС которых имеются в литературе (см. выше), эффект Зеемана имеет смысл обсуждать лишь для двух:  $5s^3 D_2 - 5p^3 P_1$  и  $5s^3 D_2 - 5p^3 D_3$ . Переход на  $^3F_3$  не годится, поскольку для него мала разность факторов Ланде верхнего и нижнего уровней (это приводит к нереально большим полям). Переход на уровень  $^3P_2$  не следует рассматривать из-за того, что переход  $J = 2, M_J = 0 - J' = 2, M_{J'} = 0$  (а именно он является рабочим в магнитном поле, т. к. частоты остальных переходов в магнитном поле сдвигаются) запрещен правилами отбора (соответствующий коэффициент Клебша – Гордана равен нулю).

Схема расчетов аналогична описанной в [10]. Сначала независимо для верхнего и нижнего уровней изотопа 105 определялись энергии подуровней в магнитном поле (собственные значения матрицы возмущений) и коэффициенты смешивания (собственные векторы матрицы возмущений). Затем по полученным собственным векторам определялись вероятности переходов (для линейной поляризации излучения) и строился спектр. Пример результата расчета для перехода  $5s^3 D_2 - 5p^3 P_1$  приведен на рис.9. Анализ полученных в результате расчетов данных показывает, что при полях с разумной напряженностью (до 20 кГс) с помощью магнитного поля убрать линии поглощения изотопа 105 из области поглощения изотопа 102 на переходе как  $5s^3 D_2 - 5p^3 P_1$ , так и  $5s^3 D_2 - 5p^3 D_3$  не удается. Причиной этого является то, что, в отличие от перехода из основного состояния, и нижний и верхний уровни испытывают в магнитном поле сдвиги (почти одинаковые и, вдобавок, нелинейные по полю). По-видимому, такая ситуация будет реализовываться и на других переходах с уровня  $5s^3 D_2$ .

Табл.3. Структура линий  $5p - 5s^3D_2$  в  $^{105}\text{Pd}$  (отстройки даны в мегагерцах).

| $F - F'$   | $5p^3P_1 - 5s^3D_2$ | $5p^3P_2 - 5s^3D_2$ | $5p^3D_3 - 5s^3D_2$ | $5p^3F_3 - 5s^3D_2$ |
|------------|---------------------|---------------------|---------------------|---------------------|
| 1/2 - 1/2  | —                   | 1091                | 1638                | 1615                |
| 1/2 - 3/2  | —                   | <b>812</b>          | 1359                | 1336                |
| 3/2 - 1/2  | 171                 | 1110                | 1637                | 1592                |
| 3/2 - 3/2  | -108                | <b>831</b>          | 1358                | 1313                |
| 3/2 - 5/2  | -473                | <b>466</b>          | 993                 | 948                 |
| 5/2 - 3/2  | <b>450</b>          | <b>784</b>          | 1289                | 1221                |
| 5/2 - 5/2  | 85                  | <b>419</b>          | 924                 | <b>856</b>          |
| 5/2 - 7/2  | -226                | 118                 | <b>623</b>          | <b>555</b>          |
| 7/2 - 5/2  | <b>393</b>          | 190                 | <b>688</b>          | <b>614</b>          |
| 7/2 - 7/2  | 92                  | -111                | <b>387</b>          | <b>313</b>          |
| 7/2 - 9/2  | 65                  | -138                | <b>360</b>          | 286                 |
| 9/2 - 7/2  | —                   | -686                | -153                | -191                |
| 9/2 - 9/2  | —                   | -713                | -180                | -218                |
| 11/2 - 9/2 | —                   | —                   | -1203               | -1129               |

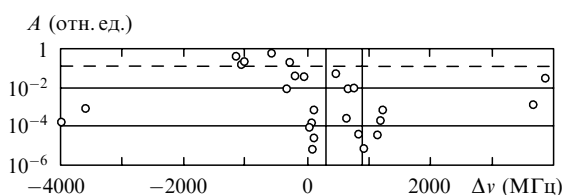


Рис.9. Относительные вероятности поглощения линейно-поляризованного излучения на переходе  $5s^3D_2 - 5p^3P_1$  изотопа  $^{105}\text{Pd}$  в магнитном поле 2500 Гс. Каждая точка соответствует одной линии поглощения. Вертикальными линиями отмечены границы диапазона частот, соответствующего поглощению  $^{102}\text{Pd}$  ( $600 \pm 300$  МГц), штриховая линия – относительная вероятность поглощения изотопа 102.

Таким образом, получить высокую селективность ионизации изотопа 102 на переходах из состояния  $5s^3D_2$  на те уровни, для которых известна СТС, при характерных спектральных ширинах атомных линий поглощения и линии лазера порядка 0.5 ГГц не удастся.

## 7. Выводы

Подытожим основные результаты работы.

1. На основе схемы селективной двухступенчатой ионизации достигнуто существенное обогащение различными изотопами палладия:  $^{102}\text{Pd}$  – до 18 % (по сравнению с естественным содержанием 1 %),  $^{104}\text{Pd}$  – до 70 % (11.4 %),  $^{105}\text{Pd}$  – до 60 % (22.33 %).

2. Проведенные эксперименты показали, что большинство известных из литературы оптических характеристик, имеющих важное значение для процесса селективной фотоионизации  $^{102}\text{Pd}$ , не соответствуют действительности. К ним относятся как данные по сечению фотоионизации, так и сведения об изотопической и сверхтонкой структурах состояния  $4d^9 5p^3P_1$ .

3. На основе полученных экспериментальных данных оценочно восстановлены сверхтонкая и изотопическая структуры уровня  $4d^9 5p^3P_1$ . Проведены численные расчеты на основе уточненных данных о структуре уровня  $4d^9 5p^3P_1$ .

4. Определены требования к лазерному излучению и доплеровской ширине линии атомов, обеспечивающие высокую селективность фотоионизации. Ширина линии лазера (после удвоения) должна быть 60–80 МГц, стабильность частоты лазера (до удвоения) должна составлять 20–40 МГц, ширина атомных линий не должна превышать 100 МГц. Требования к пиковой интенсивности лазера второго канала при этом остаются прежними ( $\sim 1$  МВт/см<sup>2</sup>), а пиковая интенсивность первого канала может быть снижена примерно в два раза (до 15 Вт/см<sup>2</sup>).

- Держиев В.И., Дякин В.М., Илькаев Р.И., Михальцов Л.А., Сапожков А.Ю., Селемир В.Д., Сидоров И.И., Ткачев А.Н., Чаушанский С.А., Яковленко С.И. *Квантовая электроника*, **32** (7), 619 (2002).
- 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** (9), 771 (1996).
- Derzhiev V.I., Kuznetsov V.A., Mikhal'tsov L.A., Mushta V.M., Sapozhkov A.Yu., Tkachev A.N., Chaushanskii S.A., Yakovlenko S.I. *Proc. Int. Conf. Lasers'96* (McLean, VA: STS Press, 1997, p. 441-448).
- 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** (3), 287 (1998).
- Яковленко С.И. *Квантовая электроника*, **25** (11), 971 (1998).
- Yakovlenko S.I. *Las. Part. Beams*, **16** (4), 541 (1998).
- Яковленко С.И. *Изв. вузов. Сер. Физика*, **42** (8), 82 (1999).
- Yamaguchi H., Sasao N. *Proc. Int. Symp. on advanced nuclear energy research* (1992, p. 129-134).
- Sasao N., Yamaguchi H. *Laser isotope separation apparatus*. US Patent US005110562A, filed Feb. 28, 1990. Date of Patent May 5, 1992.
- Ткачев А.Н., Яковленко С.И. *Квантовая электроника*, **32** (7), 614 (2002).
- Бабаев В.С. и др. *Оптика и спектроскопия*, **54** (2), 337 (1983).
- Roychoudhuri Ch. *J. Opt. Soc. Am.*, **65** (12), 1418 (1975).
- Budick V. *Phys. Rev.*, **168** (1), 89 (1968).
- Liening H. *Z. Physik*, **266**, 287 (1974).
- Baird P.E.G. *Proc. R. Soc. Ldn. A*, **351**, 267 (1976).
- Kummel E., Baumann M., Kischel C.S. *Z. Phys. D*, **25**, 161 (1993).
- Hughes R.H., Sharpston F.A. *Rhys. Rev.*, **121** (6), 1702 (1961).