

## О лазерном разделении редких изотопов

А.Н.Ткачев, С.И.Яковленко

Дан краткий обзор работ по лазерному разделению редких изотопов иттербия и палладия на основе селективной фотоионизации. В основу обогащения  $^{168}\text{Yb}$  положена оптическая схема, предложенная А.М.Прохоровым с сотрудниками в 1991 г. Приведены подробные сведения о кинетической модели селективной фотоионизации, а также данные о получении весовых количеств  $^{168}\text{Yb}$  с высоким обогащением: в плазме – до 90 % – 95 %, на коллекторе – до 62 %, в смыве – до 45 %. Скорость производства обогащенного иттербия достигает 5–10 мг/ч (более 1 г в месяц). Приведены также результаты экспериментальных и теоретических исследований изотопически-селективной фотоионизации палладия. Достигнуто существенное обогащение различных изотопов палладия:  $^{102}\text{Pd}$  – до 18 % (естественное содержание 1 %),  $^{104}\text{Pd}$  – до 70 % (11.4 %),  $^{105}\text{Pd}$  – до 60 % (22.33 %). Проведен анализ кинетики селективной фотоионизации палладия на основе новых экспериментальных данных по тонкой структуре и сверхтонкому расщеплению термов.

**Ключевые слова:** лазерное разделение изотопов, селективная фотоионизация, автоионизационные состояния.

### 1. Введение

Как известно, Александр Михайлович Прохоров активно поддерживал направления исследований, связанные с лазерным разделением изотопов [1–4]. Будучи академиком-секретарем Отделения общей физики и астрономии РАН, он стимулировал эти исследования не только в ИОФАНе, но и в других институтах нашей страны, в частности в Институте спектроскопии РАН [5–7]. В данном обзоре отражены исследования по лазерному разделению редких изотопов на основе селективной фотоионизации, поскольку эти работы завершились производством коммерчески выгодного продукта (см. обзоры [8–10]). Основное внимание в настоящем обзоре уделено иттербию и палладию, однако многие рассматриваемые проблемы являются общими и для других редких изотопов.

**Основы метода.** Идея и первые разработки метода лазерного разделения изотопов на основе лазерной селективной фотоионизации принадлежат В.С.Летохову [7, 11]. По отношению к методу лазерной селективной фотоионизации в англоязычной литературе часто используют аббревиатуру AVLIS (Atomic Vapor Laser Isotope Separation). Мы будем пользоваться сокращением ЛРИ (лазерное разделение изотопов).

Упрощенная схема зоны разделения изотопов методом ЛРИ изображена на рис. 1. Процесс разделения состоит из нескольких стадий.

1. Из твердотельной фазы получают пар рабочего элемента. Этот пар содержит естественную смесь изотопов. Для тугоплавких элементов, к которым относятся, например, уран и гадолиний, используют испарение пучком электронов. В случае легко испаряющихся металлов (например, иттербия) нагрев осуществляют в печи.

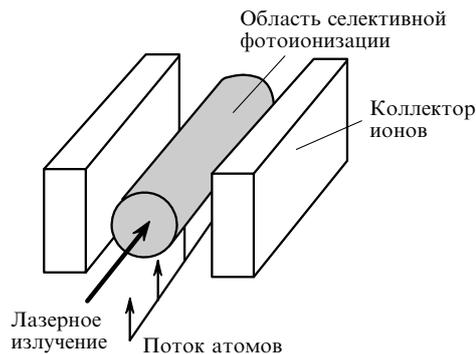


Рис.1. Схема метода лазерного разделения изотопов

2. Полученный пар ионизируют излучением нескольких лазеров. Для преимущественной ионизации нужного изотопа излучение лазеров должно иметь очень малый разброс по частоте и его необходимо с большой точностью (часто до седьмого знака в длине волны) настроить на переходы соответствующего изотопа. Излучение лазеров должно быть достаточно стабильным.

3. Ионы, имеющие обогащенный изотопный состав, экстрагируются из пара и транспортируются на коллектор с помощью электрического поля или его комбинации с магнитным полем. Дальнейшая обработка вещества осуществляется давно и хорошо разработанными химическими методами.

**Два направления ЛРИ.** Можно говорить о двух основных направлениях развития этого метода для стабильных изотопов: получение сравнительно больших количеств (порядка тонны в год) слабообогащенного продукта (например,  $^{235}\text{U}$ ) для ядерной энергетики и получение высокообогащенных изотопов в значительно меньших количествах для медицинских целей.

Возможно использование ЛРИ для научных исследований с радиоактивными изотопами, в частности получение изобарно-чистых пучков радиоактивных коротко-

А.Н.Ткачев, С.И.Яковленко. Институт общей физики им. А.М.Прохорова РАН, Россия, 119991 Москва, ул. Вавилова, 38

живущих изотопов [12]. Однако здесь идет речь об исследованиях, направленных на получение промышленных количеств стабильных изотопов.

В СССР и США к реализации программы лазерного разделения изотопов приступили в середине 1970-х годов. В США основные исследования по лазерному разделению изотопов урана велись в Ливерморской национальной лаборатории, в отчетах которой сообщалось о больших успехах. Однако лазерный метод производства ядерного топлива пока существенно дороже обычного. Во всяком случае, на мировой рынок продукция, полученная этим методом, еще не поступала. В настоящее время эти исследования приостановлены. Затраты на них составили примерно два миллиарда долларов.

В СССР исследования резонансной лазерной ионизации атомов и разделения изотопов проводились в Институте общей физики АН и в Институте спектроскопии АН, а работа по разделению урана велась, в основном, в Институте атомной энергии им. И.В.Курчатова (ныне Курчатовский федеральный научный центр). В настоящее время интенсивные исследования метода ЛРИ осуществляются во Франции и в Японии.

Перспективность разработки методов ЛРИ для энергетических атомных реакторов вызывает сомнения. Дело в том, что еще с 1950-х годов в нашей стране в промышленном производстве используется метод газового центрифугирования, и вряд ли в обозримом будущем установки, основанные на лазерной селективной фотоионизации, смогут конкурировать с газовыми центрифугами.

Однако метод газового центрифугирования работает только для элементов, имеющих достаточно устойчивые газофазные химические соединения. В других случаях обычно используется довольно дорогостоящий метод электромагнитной сепарации, с которым лазерные методы конкурировать могут.

Итак, в настоящее время, по нашему мнению, более перспективным является использование ЛРИ для получения сильнообогащенного изотопа в не очень больших количествах (порядка килограммов в год) для медицинских целей.

**Основные проблемы.** Лабораторная демонстрация эффекта селективной фотоионизации осуществлена для многих элементов еще в 1970-х годах. Однако задача получения весовых количеств высокообогащенного изотопа при малом его содержании в естественной смеси порождает ряд новых теоретических и технических проблем. Кратко перечислим лишь некоторые из них.

1. Необходимость максимально эффективного использования лазерного излучения. Это излучение обладает высоким качеством, а его получение оказывается весьма дорогим. Однако на разных переходах атомный пар поглощает лазерное излучение с разной эффективностью, например возможны ситуации, когда на первом переходе поглотилось уже все излучение, а на третьем – лишь сотая доля вводимой энергии.

2. Сложность управления процессом экстракции ионов. В результате фотоионизации образуется плазма, которая во внешних электрических и магнитных полях часто ведет себя непредсказуемым образом. Точнее говоря, ее движение сложно рассчитать и еще сложнее выполнить условия, при которых ее поведение будет совпадать с расчетным.

3. Засорение коллектора ионов. Нельзя допустить, чтобы на коллектор попадала даже малая доля испарен-

ного вещества, если количество искомого изотопа в естественной смеси невелико. Конечно, поток испаренных атомов можно ограничить диафрагмой, чтобы он не попадал на коллектор. Однако атомы в потоке сталкиваются друг с другом и после столкновения могут попадать в область геометрической тени.

Возникающие проблемы надо решать в совокупности, а не по отдельности. Например, конструируя источник паров, надо помнить не только об опасности засорения коллектора и о трудностях транспортировки плазмы, но и о том, что плотность паров должна быть согласована с мощностями лазеров, а распределение по скоростям в потоке паров, обусловленное эффектом Доплера, должно согласовываться с шириной лазерной линии.

Более того, даже когда эти проблемы в принципе решены, надо не только точно рассчитать режим работы, близкий к оптимальному, но и выдержать его при практической реализации. В то же время режим работы установки характеризуется сотнями различных параметров. Например, каждый лазерный пучок задается не только частотой, но и формой спектральной линии, а также характерными временами нарастания и спада импульса, углами, под которыми вводится лазерный луч в поглощающую среду, и поляризацией излучения.

Все это ставит лазерное выделение весовых количеств изотопа с исходно низким содержанием в один ряд с наиболее наукоемкими технологиями, в частности технологиями получения сверхчистых материалов.

**Выделение весовых количеств  $^{168}\text{Yb}$ .** Исследования, проведенные в ИОФРАНе и НПО ЛАД (ныне «ИЗО»), были направлены на получение граммовых количеств высокообогащенного изотопа для применения в медицине [13–19]. Эта задача является более наукоемкой, но требует меньших материальных затрат, что в значительной мере способствует успеху. Одним из наиболее интересных примеров дорогого редкого изотопа является  $^{168}\text{Yb}$ . Его содержание в естественной смеси составляет всего лишь 0.14 %, а используется смесь с обогащением свыше 20 % – 25 %, поэтому его стоимость, согласно окриджскому прайс-листу, составляет более 300 тыс. долларов за грамм. (Следует, впрочем, отметить, что цены, указанные в этом прайс-листе, примерно в два раза завышены по сравнению с реальными рыночными ценами.) Данный изотоп используется в медицине для диагностики дефектов сердечной мышцы и при лечении раковых заболеваний.

Схема селективной трехступенчатой ионизации итербия предложена в 1991 г. А.М.Прохоровым, Б.Б.Крынецким и В.А.Мишиным [4] (рис.2). Она привлекательна тем, что для селективной ионизации можно использовать видимое излучение перестраиваемых лазеров на красителях, накачиваемых медными лазерами. Селективное возбуждение осуществляется на втором переходе ( $\lambda = 581.067 \text{ нм}$ ).

Однако реализация этой схемы потребовала решения ряда важных научных и научно-технических задач, которые не возникали ни при лабораторной демонстрации эффекта, ни в исследовательской работе, не ориентированной непосредственно на прибыльное производство.

Изначальная направленность на коммерчески выгодное получение весовых количеств редкого изотопа обусловила существенные отличия наших исследований как от работ по получению ядерного топлива для энергетических реакторов, так и от лабораторных разработок.

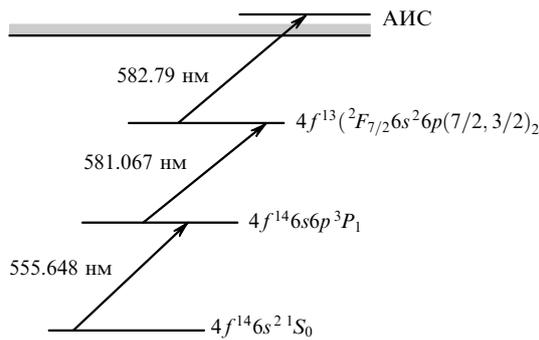


Рис.2. Схема трехступенчатой фотоионизации атома иттербия

С одной стороны, удалось обойтись сравнительно небольшими установками с малой энергетикой и избежать проблем, связанных с электронно-лучевым испарением материала. С другой стороны, из-за малого содержания целевого изотопа резко обострились трудности, связанные с обеспечением селективности и эффективности фотоионизации в сравнительно большом объеме [20–22] и с проблемой засорения коллектора при формировании потока паров [23–29]. В то же время необходимость получения весовых количеств редкого изотопа усугубляет эти трудности, поскольку при экстракции ионов возникает существенный объемный заряд [30–35]. Возникающие проблемы решались в комплексе, а не по отдельности. Широко использовалось математическое моделирование.

Работы [13–19] (см. также обзоры [8–10]) качественно продвинули задачу лазерного разделения изотопов методом ЛРИ. Удалось решить перечисленные выше ключевые проблемы лазерного выделения весовых количеств изотопа с исходно низким содержанием в естественной смеси. Ниже дан краткий обзор этих результатов, особое внимание уделено выбору схемы фотоионизации и вопросам, недостаточно отраженным в [8–10].

**Выделение весовых количеств  $^{102}\text{Pd}$ .** Другим интересным в рыночном отношении изотопом представляется  $^{102}\text{Pd}$ , содержание которого в естественной смеси составляет 1.02%. Стоимость девяностопроцентного  $^{102}\text{Pd}$ , согласно окриджскому прайс-листу, составляет 700 тыс. долларов за грамм. Естественно попытаться использовать опыт, накопленный при производстве  $^{168}\text{Yb}$ , для выделения весового количества  $^{102}\text{Pd}$ .

Для  $^{102}\text{Pd}$  перечисленные трудности выделения весовых количеств редкого изотопа остаются в силе. Кроме того, имеется ряд существенных дополнительных трудностей, характерных именно для палладия:

1. Оптическая схема селективной фотоионизации  $^{102}\text{Pd}$  не только не исследована теоретически и экспериментально, но до недавнего времени даже не существовала. Рассматривалась только схема обогащения выходного продукта изотопами  $^{105}\text{Pd}$  и  $^{107}\text{Pd}$  [36, 37].

2. Характерные изотопные сдвиги для палладия намного меньше, чем для иттербия. Кроме того, до недавнего времени отсутствовали надежные экспериментальные данные об изотопической и сверхтонкой структурах наиболее удобного для ЛРИ уровня  $4d^9 5p^3 P_1$ .

3. Спектр переходов оптических электронов палладия предполагает обязательное использование УФ излучения. Для промышленных применений ЛРИ при накачке перестраиваемыми лазерами в настоящее время наиболее удобны лазеры на парах меди. Поэтому необходимо

использовать удвоение частоты лазеров, что существенно усложняет технологическую цепочку.

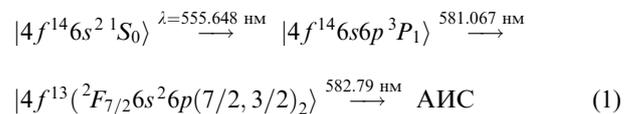
4. Температура испарения палладия выше, чем у иттербия. Это приводит к существенному усложнению конструкции печи.

Для выявления принципиальных возможностей промышленного производства весовых количеств  $^{102}\text{Pd}$  были проведены исследования, отраженные в работах [38–41]. Недавно появилась работа [42] с более точными сведениями об изотопической и сверхтонкой структурах термов палладия. Ниже представлены результаты теоретического анализа возможностей селективной фотоионизации палладия с учетом новых данных.

## 2. Лазерное разделение изотопов иттербия

### 2.1. Кинетическая модель селективной фотоионизации

**Выбор возбужденных состояний.** В работах [14–19] (см. также [8–10]) использовалась трехступенчатая схема фотоионизации  $^{168}\text{Yb}$  через автоионизационное состояние (АИС), предложенная в [4]:



(см. рис.2). Эта схема позволяет использовать лазеры на красителях, накачиваемые излучением лазеров на парах меди. Селектирующим в схеме является второй переход. Остановимся подробнее на обосновании выбора этой схемы.

Будем ориентироваться на накачку красителей излучением Си-лазера ( $\lambda = 510.554$  и  $578.213$  нм). В качестве красителя рассматривается родамин ( $\lambda = 540 – 600$  нм; отметим, что диапазон перестройки взят несколько более широким, чем в действительности). Этим длинам волн соответствуют энергии квантов  $E = 19587, 17295$   $\text{см}^{-1}$  (для меди) и  $E = 16600 – 18520$   $\text{см}^{-1}$  (для родамина).

Основное состояние Yb (первый уровень схемы) имеет конфигурацию  $4f^{14} 6s^2 1S_0$  (четный уровень). Переход из него возможен в нечетное состояние с  $J = 1$ . Энергии четырех низших возбужденных состояний Yb следующие:  $4f^{14} 6s 6p^3 P_0 – 17288.44$   $\text{см}^{-1}$ ,  $4f^{14} 6s 6p^3 P_1 – 17992.0$   $\text{см}^{-1}$ ,  $4f^{14} 6s 6p^3 P_2 – 19710.39$   $\text{см}^{-1}$ ,  $4f^{13} 5d 6s^2 (7/2, 3/2)_2 – 23188.52$   $\text{см}^{-1}$ . По энергии в качестве второго уровня схемы подходят все три уровня  $4f^{14} 6s 6p^3 P_{0,1,2}$ , но правила отбора выделяют из них единственный –  $4f^{14} 6s 6p^3 P_1$ . Изотопическая и сверхтонкая структуры (СТС) перехода  $1S_0 \rightarrow 3P_1$  не позволяют обеспечить высокую селективность возбуждения  $^{168}\text{Yb}$  на этом переходе из-за блендирования (спектрального наложения линий различных изотопов) линии поглощения изотопа  $^{168}\text{Yb}$  линиями нечетных изотопов (табл.1).

Третий уровень схемы ионизации должен быть четным, иметь полный момент  $J = 0, 1$  или  $2$ , энергия уровня должна лежать в диапазоне  $34592 – 36512$   $\text{см}^{-1}$  либо быть точно равной  $35287$  или  $37579$   $\text{см}^{-1}$  (если ориентироваться непосредственно на излучение медного лазера).

В диапазоне энергий  $34500 – 38000$   $\text{см}^{-1}$  находятся следующие уровни Yb:  $4f^{13} 6s^2 6p (7/2, 3/2)_5 – 35178.78$   $\text{см}^{-1}$ ,  $4f^{13} 6s^2 6p (7/2, 3/2)_2 – 35196.98$   $\text{см}^{-1}$ ,  $4f^{13} 6s^2 6p (7/2, 3/2)_3 – 35807.52$   $\text{см}^{-1}$ ,  $4f^{13} 6s^2 6p (7/2, 3/2)_4 – 36060.98$   $\text{см}^{-1}$ . Правила отбора по моменту опять выделяют единственный уровень –  $4f^{13} 6s^2 6p (7/2, 3/2)_2$ . СТС и изотопические

Табл.1. Характеристики переходов  $6^3P_1 \rightarrow 6^1S_0$  с учетом изотопической и сверхтонкой структур изотопов Yb (данные экспериментов [4], погрешность  $\sim 10$  МГц).

$A$	$F' - F$	$\Delta\nu$ (МГц)
173	7/2-5/2	-2409
171	1/2-1/2	-2136
176	1-0	-948
174	1-0	0
172	1-0	993
170	1-0	2283
173	5/2-5/2	2301
<b>168</b>	<b>1-0</b>	<b>3636</b>
173	3/2-5/2	3804
171	3/2-1/2	3816

Примечание. Выделен изотоп 168, представляющий наибольший практический интерес.

сдвиги частоты перехода  $^3P_1 \rightarrow (7/2, 3/2)_2$  оказываются достаточно большими для того, чтобы обеспечить высокую селективность возбуждения практически любого из изотопов иттербия, в частности изотопа 168 (табл.2).

Отметим, что при использовании других красителей в качестве третьего уровня схемы фотоионизации может рассматриваться еще и уровень  $4f^{14}6s7s^1S_0$  ( $E = 34350.65$  см $^{-1}$ ), однако изотопическая структура перехода на этот уровень оказывается менее подходящей для выделения изотопа 168, чем у уровня  $4f^{13}6s^26p$  ( $7/2, 3/2)_2$  [4].

**Автоионизационные состояния.** Четвертый уровень схемы (АИС) должен иметь энергию в диапазоне 51790 – 53720 см $^{-1}$  или иметь точное значение 54784 либо 52492 см $^{-1}$  (если ориентироваться непосредственно на излучение медного лазера), быть нечетным и иметь момент  $J = 1, 2$  или 3.

В работах [4] обнаружены четыре АИС, в которые возможны переходы с третьего уровня схемы селективной фотоионизации  $[7/2, 3/2)_2$ . Интенсивные переходы наблюдались в АИС с энергиями  $E = 52353$  и  $52609$  см $^{-1}$ , было измерено сечение перехода в АИС с энергией  $52353$  см $^{-1}$  и приведены спектры, перекрывающие одновременно состояния с энергиями  $52353$  и  $52609$  см $^{-1}$ , что по-

Табл.2. Характеристики переходов  $(7/2, 3/2)_2 \rightarrow 6^3P_1$  с учетом изотопической и сверхтонкой структур изотопов Yb (данные экспериментов [4], погрешность  $\sim 10$  МГц).

$A$	$F' - F$	$\Delta\nu$ (МГц)
<b>168</b>	<b>2-1</b>	<b>-10293</b>
171	3/2-3/2	-8805
170	2-1	-6318
171	5/2-3/2	-5973
173	1/2-3/2	-4147
173	3/2-3/2	-3612
173	5/2-3/2	-3302
171	3/2-1/2	-2862
172	2-1	-2711
173	7/2-5/2	-2532
173	3/2-5/2	-2126
173	5/2-5/2	-1833
173	9/2-7/2	-732
174	2-1	0
173	7/2-7/2	2172
176	2-1	2578
173	5/2-7/2	2894

Примечание. Выделен изотоп 168, представляющий наибольший практический интерес.

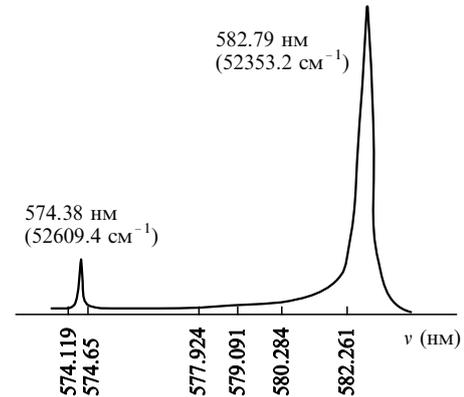


Рис.3. Участок спектра фотоионизации с уровня  $[7/2, 3/2)_2$  (по данным работы [4]).

зволяет восстановить сечение и для перехода с  $E = 52609$  см $^{-1}$  (рис.3). Для перехода в состояние с  $E = 52353$  см $^{-1}$  сечение ионизации  $\sigma_i = (6 - 7) \times 10^{-16}$  см $^2$  (для  $\lambda = 582.79$  нм, резонансной пику АИС). Сечение ионизации излучением лазера с  $\lambda = 581.067$  нм, резонансным переходу в состояние с  $E = 52609$  см $^{-1}$ , примерно в 17 раз меньше и составляет  $(3 - 4) \times 10^{-17}$  см $^2$ .

Интересна возможность использования для фотоионизации перехода  $[7/2, 3/2)_2 \rightarrow 5d6p^3D_1$  ( $E = 51797$  см $^{-1}$ ,  $\lambda = 601.9$  нм). Дело в том, что накачку красителя в этом случае можно осуществлять не только зеленой, но и желтой линией медного лазера. Однако, согласно [4], остальные переходы, в том числе в состояние с  $E = 51797$  см $^{-1}$ , по-видимому, слабы – данные участки спектра в [4] отсутствуют. Это, скорее всего, означает, что сечения переходов в них меньше сечения перехода в состояние с  $E = 52353$  см $^{-1}$  в 50 и более раз.

Работы по измерению спектров фотопоглощения из основного состояния иттербия [43, 44] не позволяют ответить на вопрос о сечении фотоионизации из возбужденного состояния  $[7/2, 3/2)_2$ . Дело в том, что при переходе в АИС из основного состояния и с третьего рабочего уровня схемы работают два различных двухэлектронных перехода; при этом, зная сечение первого из них, мы не можем оценить сечение второго. Из общих соображений можно лишь утверждать, что второй переход должен быть серьезно затруднен по сравнению с первым. Кроме того, вероятность второго перехода должна быть существенно меньше из-за меньшей разницы в энергиях состояний.

Работы [4] по поиску АИС в несколько расширенном варианте были воспроизведены в [45], данные которой также не дают ответа на вопрос о сечении перехода с  $\lambda = 601.9$  нм (рис.4, 5). Хотя спектры и имеются, но их невозможно «сшить» (что нужно для получения оценки сечения), поскольку отсутствует информация как о шкалах по оси  $y$ , так и о положении нулей на этой оси. В работе [45] переход на уровень с  $E = 51797$  см $^{-1}$  считается переходом средней интенсивности, в то время как переход на уровень с  $E = 52353$  см $^{-1}$  считается сильным. Интересно отметить, что переход на уровень с  $E = 52606$  см $^{-1}$  по данным [45] примерно в 10 раз более интенсивен, чем в [4], что, по-видимому, правильно. Дело в том, что для соответствующего АИС  $J = 2$  (это стало известно только после измерений, проведенных в [45]). При тех поляризациях излучения лазеров, которые были использованы в [4], этот переход запрещен. Кроме того, в работе

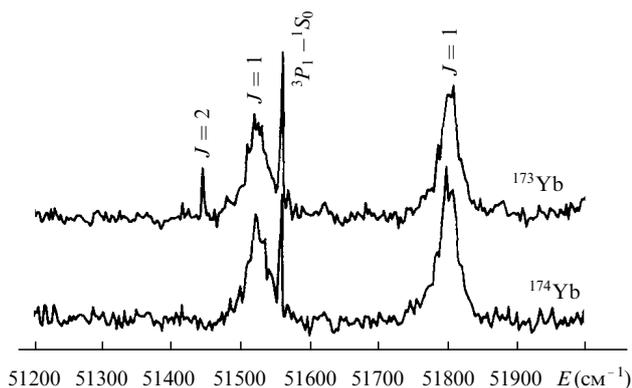


Рис.4. Участок спектра фотоионизации с уровня  $[7/2, 3/2]_2$  (по данным работы [45]).

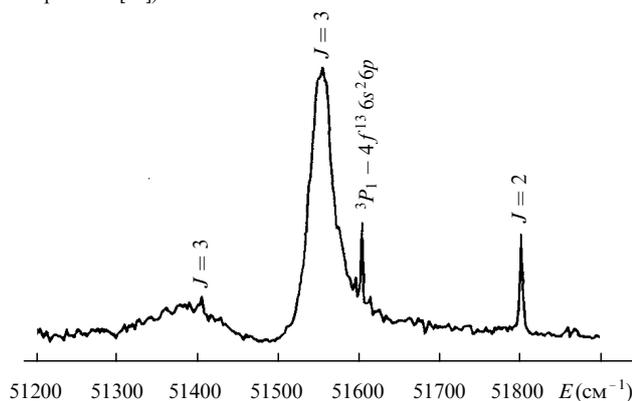


Рис.5. То же, что на и рис.4, для участка спектра с рекомендованным в [4] резонансом.

обнаружено несколько более «длинноволновых» АИС, причем переход в одно из них был оценен авторами [45] как сильный (абсолютное сечение также неизвестно).

Параметры некоторых АИС из обнаруженных в [45] (они могут быть использованы в качестве четвертого уровня схемы фотоионизации) вместе с параметрами АИС, изученных в [4], приведены в табл.3.

Исходя из приведенных выше данных, схема (1) представляется в настоящее время оптимальной. Отметим, впрочем, что спектр АИС изучен недостаточно. Возможно, еще будут обнаружены новые АИС, и схему селективной фотоионизации на третьей ступени можно будет улучшить.

**Постановка задачи и метод ее решения.** Рассматривалась задача о фотоионизации оптически тонкого слоя паров Yb с естественным изотопным составом излучением трех совмещенных в пространстве пучков лазеров,

имеющих линейную поляризацию излучения (см. также [18]). Первый лазер был настроен на переход  $^1S_0 - ^3P_1$  (длина волны вблизи  $\lambda_{12} = 555.648$  нм), второй – на переход  $^3P_1 - (7/2, 3/2)_2$  ( $\lambda_{23} = 581.067$  нм) и третий – на переход  $(7/2, 3/2)_2 - \text{АИС}$ .

Зависимость интенсивности пучков лазеров от времени полагалась трапецеидальной (задавались длительности передних и задних фронтов импульсов, а также плоских вершин); независимо задавались задержки импульсов каждого из трех лазеров относительно момента начала отсчета времени. Типичная длительность импульсов по полувысоте составляла 20 нс, задержки между импульсами варьировались в диапазоне 0–80 нс. Интенсивность излучения лазера в импульсе выбиралась обычно такой, чтобы при сечении пучка порядка  $1 \text{ см}^2$  средняя мощность импульсно-периодического лазера составляла примерно 1 Вт.

Спектры излучения первого и второго лазеров могли выбираться гауссовыми либо лоренцевыми (задавалась ширина и вид спектра каждого из них); спектральный состав излучения ионизирующего лазера несуществен из-за большой ширины АИС.

Среда (пары Yb) характеризовалась плотностью и распределением атомов по проекции скорости на направление распространения лазерных пучков. Атомы среды делились на  $n = 5 - 15$  групп по проекции скорости. Для каждой скоростной группы записывались уравнения баланса для полной системы СТС подуровней первого, второго и третьего уровней и АИС для каждого из изотопов Yb (всего решалось  $50n$  уравнений). Распределение атомов по скоростям могло задаваться произвольным (в приводимых здесь расчетах оно полагалось максвелловским).

Система уравнений баланса решалась стандартным методом Рунге–Кутты 4-го порядка. Типичный шаг по времени составлял при этом 0.05–0.5 нс. Продолжительность полного расчета кинетики ионизации на РС486/66 (время процесса порядка 150 нс) при заданных длинах волн лазеров составляла 20–40 с.

**Скорости процессов и кинетическая модель.** Учитывались следующие процессы:

- фотовозбуждение (девозбуждение) лазерным излучением и спонтанный радиационный распад уровней 1, 2 и 3;

- фотоионизация (через АИС) вторым и третьим лазерами с уровня 3. Учет ионизации вторым лазером необходим в силу большой ширины выбранного АИС – переход с уровня 3 в континуум на длине волны второго лазера попадает на крыло АИС и имеет заметную интенсивность;

Табл.3. Параметры АИС, которое может быть использовано в качестве четвертого уровня схемы фотоионизации иттербия, по данным работ [4] и [45] (данные [45] указаны в скобках).

Длина волны перехода $[7/2, 3/2]_2 \rightarrow \text{АИС}$ (нм)	Энергия АИС ( $\text{см}^{-1}$ )	Ширина перехода ( $\text{см}^{-1}$ )	Сечение перехода ( $\text{см}^2$ )	Полный момент $J$
574.38*	52609.4 (52601.8)	1.5 (2.91)	$2 \times 10^{-17} (2 \times 10^{-16})$	2
582.79*	52353.2 (52349.9)	13.5 (14.5)	$6.7 \times 10^{-16}$	3
588.75*	52186.0 (52187.2)	77 (106)	–	3
601.91*	51797.0 (51805.2)	25 (35)	–	1
(615.7**)	(51439.2)	(2)	–	2
(612.6**)	(51520.1)	(50)	–	1
(602.1**)	(51805.2)	(35)	–	1

\* – измерения в воздухе, \*\* – в вакууме.

– затухание уровня 3 за счет радиационного распада в неучтенные в модели состояния.

Скорость стимулированного фотоперехода для атома, имеющего проекцию скорости на направление распространения пучка  $v$  в условиях, когда ширина спектра лазера много больше естественной ширины линии атома и можно пренебречь полевым уширением уровней (полевая ширина много меньше ширины группы атомов по скоростям), можно записать в следующем простом виде:

$$K(v, t) = \frac{\lambda^2}{4} A \frac{I_{\text{las}}(t) S_{\text{las}}[\omega_0(1 + v/c)]}{\hbar\omega} = \sigma_{\text{ph}} \frac{I}{\hbar\omega}.$$

Здесь  $S_{\text{las}}$  – спектр лазера;  $\int S_{\text{las}}(\omega) d\omega = 1$ ;  $I_{\text{las}}$  – интенсивность лазерного излучения;  $\omega_0$  – частота атомного перехода;  $A$  – вероятность атомного перехода;  $\sigma_{\text{ph}}$  – его сечение.

Вероятности переходов  $1 \rightarrow 2$  и  $2 \rightarrow 3$  таковы:

$$A_{12} = 3.6 \times 10^6 Q(0IFM, 1IF'M', \mu),$$

$$A_{23} = 1.9 \times 10^5 Q(1IFM, 2IF'M', \mu),$$

где

$$Q(JIFM, J'IF'M', \mu) = (2F + 1)(2F' + 1)$$

$$\times \begin{pmatrix} F & 1 & F' \\ -M & \mu & M' \end{pmatrix}^2 \begin{Bmatrix} J & F & I \\ F' & J' & 1 \end{Bmatrix}$$

– угловой фактор для переходов  $E1$  между компонентами сверхтонкой структуры;  $\begin{Bmatrix} \dots \end{Bmatrix}$  –  $3jm$ -символы Вигнера;  $\begin{Bmatrix} \dots \end{Bmatrix}$  –  $6j$ -символы;  $F$  – полный угловой момент атома;  $J, I$  – моменты атомного уровня и ядра соответственно;  $M$  – проекция полного момента;  $\mu$  – поляризация ( $\mu = 0$  для линейной поляризации и  $\mu = \pm 1$  для круговой, использовался плоскополяризованный свет). Аналогичное выражение имеем для сечения фотоионизации:

$$\sigma_{\text{ph}} = 7.8 \times 10^{-15} \sum_F Q(2IFM, 3IF'M', \mu).$$

Наиболее существенным механизмом уширения атомных линий в рассматриваемых условиях является доплер-эффект. Для максвелловского распределения скоростей спектральная функция определяется известным выражением

$$S_D(\Delta\omega) = \frac{1}{\sqrt{\pi}\Delta\omega_D} \exp[-(\Delta\omega/\Delta\omega_D)^2],$$

$$\Delta\omega_D = \omega_0 v_T/c, \quad \Delta\omega = \omega - \omega_0,$$

где  $\omega_0$  – частота перехода в атоме;  $v_T = (2T/M_{\text{Yb}})^{1/2} \approx 1.1 \times 10^5 \sqrt{T}$  – тепловая скорость атомов ( $M_{\text{Yb}} \approx 173 \times 1.67 \times 10^{-24}$  г;  $T$  – температура паров). Для оценок положим  $T \approx 0.1$  эВ,  $\lambda \approx 580$  нм. Тогда имеем  $v_T \approx 3.4 \times 10^4$  см/с и соответственно  $\Delta\omega_D \approx 3.6 \times 10^9$  с<sup>-1</sup>,  $\Delta\nu_D \approx 570$  МГц.

Скорость релаксации подуровней уровня 3 в силу соотношений ортогональности и полноты для  $3jm$ -символов одинакова (от  $JIFM$  не зависит). Вообще говоря, если исключить из выражения для скорости затухания каналы, учтенные в модели, то такая зависимость появится. Однако поскольку основной вклад в скорость релаксации дают переходы в неучтенные в модели состояния, то этим можно пренебречь.

Угловые множители определяют правила отбора по проекции момента. Отметим, что правила отбора для лазерного и естественного (неполяризованного) излучений различаются:  $M = M'$  для линейно поляризованного излучения,  $M = M' \pm 1$  для круговых поляризаций,  $|M' - M| = M \leq 1$  для спонтанного излучения. В силу этого вероятности для лазерного и спонтанного переходов, вообще говоря, различны – для лазера статистический вес нижнего уровня равен статистическому весу верхнего, тогда как для спонтанных переходов эти веса пропорциональны моментам.

В рассматриваемой модели лазерное излучение считается линейно поляризованным. Поскольку полные моменты цепочек уровней для четных изотопов  $^{171}\text{Yb}$  не убывают, то нет необходимости в выделении в кинетической модели отдельных магнитных подуровней, достаточно лишь пересчитать вероятности лазерных переходов. Для  $^{173}\text{Yb}$  отдельные магнитные подуровни следует выделять. Для сокращения количества учитываемых уровней подуровни с равными по модулю  $M$  были объединены, а вероятности соответствующим образом пересчитаны. Отметим, что такое объединение подуровней возможно лишь при линейной поляризации излучения лазеров – при круговой или эллиптической поляризации пришлось бы рассматривать все подуровни отдельно.

Результаты расчетов показывают, что для обеспечения высокой селективности и эффективности ионизации  $^{168}\text{Yb}$  спектр лазера, индуцирующего второй переход, должен лежать в диапазоне длин волн  $581.0785 \pm 0.0005$  нм.

Отметим, что по различным причинам в спектре лазерного излучения возникают далекие крылья (подробнее см. [18]). Поскольку исходное содержание целевого изотопа очень мало, излучение в этих крыльях может существенно повлиять на селективность ионизации. Наличие далеких крыльев учитывалось тем, что моделируемый контур лазерной линии содержал «подложку» с амплитудой  $S$ , задаваемую из дополнительных соображений тремя точками.

Результаты расчетов (рис.6) показали, что если лазерное крыло простирается в длинноволновую область на 0.007 нм (6 ГГц), то его влияние на изотопный состав становится существенным уже при спектральном энергетическом контрасте  $\sim 100$ . Под спектральным энергетическим контрастом имеется в виду отношение спектральной плотности энергии, излучаемой лазером в центре линии, к максимальной спектральной плотности, излучаемой этим лазером в крыльях, при отстройке  $|\Delta\nu| > 1.5$  ГГц. Частота 1.5 ГГц соответствует отстройке уровня энергии ближайшего изотопа от второй ступени возбуждения.

## 2.2. Нарботка высокообогащенного изотопа

**Основные параметры.** Не останавливаясь на деталях, перечислим основные параметры, на которые мы ориентировались при оптимизационных расчетах различных узлов установки [14–19]. Это плотность паров в зоне ионизации  $(1-5) \times 10^{12}$  см<sup>-3</sup> при длине зоны ионизации 1 м и поперечном сечении зоны ионизации 5–10 см<sup>2</sup>, а также средние мощности лазеров на красителях при частоте следования импульсов 10 кГц, составившие  $\sim 1$  Вт на  $\lambda \approx 555.6$  и 581.1 нм и 3–5 Вт на  $\lambda \approx 582.8$  нм. Эти параметры в значительной мере определяют конструкцию созданной установки, принципиальная схема которой представлена на рис.7.

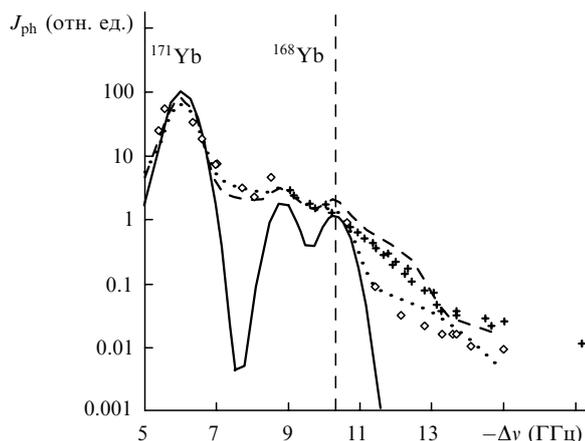


Рис.6. Зависимость фототока  $J_{ph}$  от расстройки частоты лазера  $\Delta\nu$ , стимулирующего второй (селектирующий) переход  $4f^{14}6s6p^3P_1 \rightarrow 4f^{13}6s^26p(7/2,3/2)_2$  ( $\Delta\nu$  измеряется относительно частоты этого перехода в изотопе  $^{174}Yb$ ). Сплошная кривая – расчеты при  $s = 0$  в лазерном излучении (расчетные точки следуют через 250 МГц), ромбики и крестики – данные двух серий экспериментов в разных условиях. Штриховая кривая соответствует «подложке», при которой расчетные данные удовлетворительно согласуются с экспериментальными данными, задаваемыми крестиками ( $s = 0.02$  при отстройке частоты от центра лазерной линии  $\Delta\nu' = \pm 5$  ГГц,  $s = 0.05$  при  $\Delta\nu' = 0$ ), максимальное содержание  $^{168}Yb$  равно 51 %. Пунктирная кривая соответствует ромбикам ( $s = 0.002$  при  $\Delta\nu' = \pm 7$  ГГц,  $s = 0.02$  при  $\Delta\nu' = 0$ ), максимальное содержание  $^{168}Yb$  – 54 %.

**Система медных лазеров и лазеров на красителях.** Для накачки лазеров на красителях использовалась система лазеров на парах меди с активными элементами ЛМ-8, ЛМ-25 и ЛМ-50, разработанными в ГНПП «Исток» [46]. Длительность импульса по полувысоте составляла 15 нс, частота следования импульсов равнялась 10 кГц. Активный элемент ЛМ-8 использовался в качестве задающего генератора, остальные – как усилители. Применение стабилизированных блоков питания и системы LC-обострителей обеспечивало высокую временную и амплитудную стабильность выходных лазерных импульсов, электронный многоканальный блок осуществлял синхронизацию лазерных импульсов с точностью до 1–2 нс.

Средняя выходная мощность на длине волны 510 нм при использовании усилительных головок ЛМ-25 и ЛМ-50 составляла 18 и 30 Вт. Система лазеров на красителях также состояла из трех каналов, построенных по схеме задающий генератор–усилитель. Выходная мощность третьего канала, обеспечивающего фотоионизацию, увеличивалась с помощью второго усилителя (ЛМ-50). Использовались лазеры, описанные в [47, 48].

Спектральный состав излучения формировался в задающем генераторе, основными селектирующими элементами которого являлись дифракционная решетка и эталон Фабри–Перо. Контроль длины волны лазера осуществлялся с помощью измерителя длин волн, калибруемого от стабилизированного He–Ne-лазера. Кроме того, качество излучения контролировалось по ионному составу лазерной плазмы с помощью масс-спектрометра. Сформированное задающими генераторами излучение усиливалось дальше с помощью усилителей, КПД которых достигал 25 %.

Использовались два типа красителя – R6G и R110. КПД задающего генератора составлял 20 %–25 % при работе без эталона и 15 %–18 % при работе с эталоном. Полуширины лазерных линий первой и второй ступеней возбуждения, измеренные с помощью интерферометра Физо и сканирующего интерферометра Канна, не превышали 0.5 ГГц (см. п.2.3).

Кратковременная нестабильность длин волн лазеров составляла около 200 МГц, а долговременная нестабильность, определяемая изменением температуры, была равна 400 МГц/ч. В процессе длительной эксплуатации (до 16 ч непрерывно) спектральные и энергетические характеристики воспроизводились достаточно хорошо. Уход частоты, вызванный температурным дрейфом, корректировался через каждые 0.5 ч работы.

В конце 1997 г. была создана более крупная установка с активной длиной вакуумной камеры 4.5 м. Увеличены мощности медных лазеров и лазеров на красителях. Во всех случаях использовалось трехкаскадное усиление.

**Внутрикамерное оборудование.** В состав внутрикамерного оборудования входят испаритель, система экстракторов, датчики контроля плотности пара и масс-спектро-

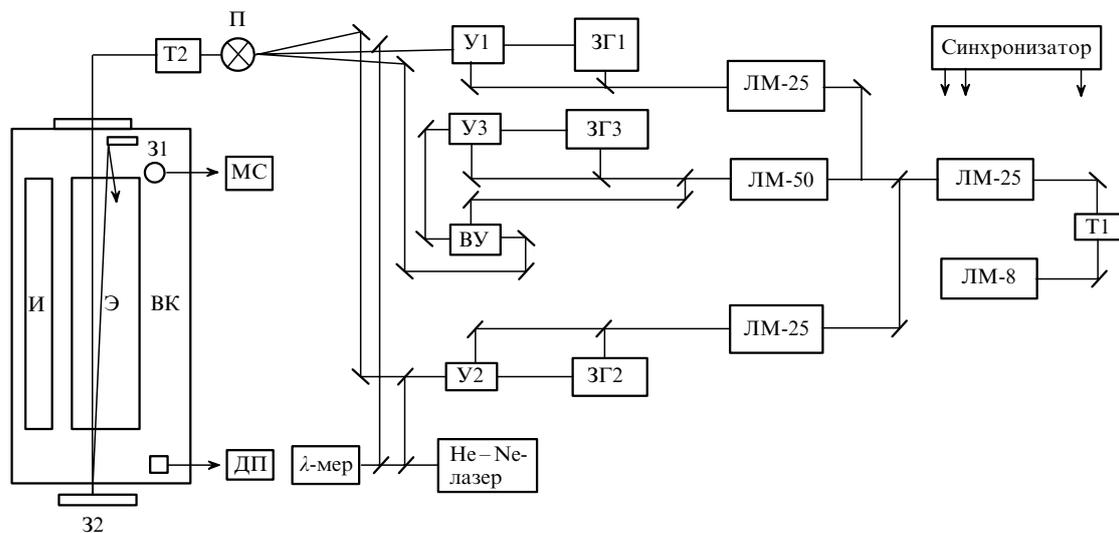


Рис.7. Схема установки [1, 2] для лазерного разделения иттербия в весовых количествах: ЛМ-8 – задающий генератор на парах меди; ЛМ-25, ЛМ-50 – усилители на парах меди; Т1 – расширитель пучка; ЗГ – задающий генератор на красителе; У – усилители на красителе; ВУ – выходной усилитель на красителе; П – перископ; Т2 – телескоп; 31, 32 – зеркала; И – испаритель; Э – экстрактор; МС – масс-спектрометр; ДП – датчик потока; ВК – вакуумная камера.

граф. Использовался испаритель с джоулевым нагревом, обеспечивающий многочасовое получение атомного пара в зоне фотоионизации плотностью до  $10^{13} \text{ см}^{-3}$  при потребляемой мощности до 3 кВт. Источником паров в большинстве экспериментов служила щель длиной 1 м и шириной 2 мм. В ряде экспериментов поток атомов формировался вытянутыми трубками или аналогичными направляющими элементами. Длительная эксплуатация испарителя продемонстрировала его высокую надежность, отсутствие зарастания щели и хорошую воспроизводимость параметров атомного пучка. Для контроля степени обогащения целевого изотопа использовался масс-спектрометр с постоянным магнитом, работающий в линии с персональным компьютером.

**Результаты экспериментов.** На описанной выше установке проведено много серий экспериментов по исследованию формирования потока паров, зависимости ионного состава фототока от длин волн, спектрального состава и мощностей лазерного излучения на различных ступенях возбуждения, а также конфигурации зоны, засвечиваемой лазерным излучением.

Основные эксперименты были проведены при следующих условиях: ширина линии генерации на первой и второй ступени  $\sim 500 \text{ МГц}$ , выходные мощности лазеров первой, второй и третьей ступеней возбуждения/ионизации 1, 1 и 4 Вт, плотность пара в зоне ионизации  $10^{11} - 10^{13} \text{ см}^{-3}$ , сечение зоны ионизации 1–4  $\text{см}^2$ , рабочие напряжения на экстракторах 100–3800 В.

В 1996–1997 гг. были достигнуты ионные токи на коллектор установки, составившие 0.5–1.5 мА на 1 м длины активной среды, что соответствует наработке около 3–10 мг/ч обогащенного иттербия с длины 1 м. В течение месяца удавалось реализовать более 200 часов работы установки и соответственно нарабатывать примерно 0.5–2 г обогащенного вещества. В осажденном на коллекторе материале (по данным независимых масс-спектрометрических анализов, проведенных в ГИРЕД-МЕТе) удалось увеличить содержание изотопа 168 до 62%. В смысле удалось достичь 45%-ного содержания  $^{168}\text{Yb}$ .

Изложенные выше результаты свидетельствуют о том, что задача лазерного разделения изотопов мето-

дом ЛРИ вышла на качественно более высокий уровень. Поскольку стоимость высокообогащенного (с содержанием целевого изотопа не менее 25%)  $^{168}\text{Yb}$  высока, то выгодно производство уже одного грамма  $^{168}\text{Yb}$  в месяц. Следовательно, впервые в мире методом ЛРИ осуществлено коммерчески выгодное производство обогащенного изотопа.

### 3. Лазерное разделение изотопов палладия

#### 3.1. Схема двухступенчатой фотоионизации палладия

**Схемы селективной фотоионизации.** Энергии уровней палладия таковы, что длины волн разрешенных переходов из основного состояния атома палладия в возбужденные лежат в УФ области спектра. Более того, если ориентироваться на жидкостные лазеры с накачкой лазерами на парах меди, то роль первого перехода схемы фотоионизации палладия может играть фактически единственный переход  $4d^{10}1S_0 - 4d^95p^3P_1$  с  $\lambda = 276.4 \text{ нм}$ . Этот переход использовался в работах [36, 37], где была сделана попытка обогатить изотоп 105 при двухступенчатой ионизации одним лазером.

Рассматривалось несколько возможных схем ступенчатой фотоионизации (рис.8).

1. Первая группа схем основана на двухступенчатой или трехступенчатой фотоионизации атомов палладия через состояние  $4d^95p^3P_1$ . Первый переход схемы  $4d^{10}1S_0 - 4d^95p^3P_1$  стимулируется излучением с  $\lambda = 276.4 \text{ нм}$  и является селективирующим. Затем, при использовании двухступенчатой схемы, имеет место либо прямая фотоионизация атомов, возбужденных УФ излучением с  $\lambda < 322 \text{ нм}$  в континуум, либо их фотоионизация через автоионизационные ридберговские состояния  $4d^9np$ ,  $4d^9nf$ . При трехступенчатой схеме ионизации стимулируется один из переходов в более высоковозбужденное состояние (например,  $6s^3D_1$ ,  $6s^1D_2$ ,  $5d^3S_1$ ,  $5d^3P_2$ ,  $5d^3P_0$ ,  $5d^3P_1$ ,  $5d^3D_2$ ). Дальнейшая фотоионизация из этих состояний возможна непосредственно линиями медного лазера.

2. Вторая группа схем основана на накоплении атомов в метастабильных состояниях  $4d^95p$ . Первый переход, как и в первой группе схем, стимулируется излуче-

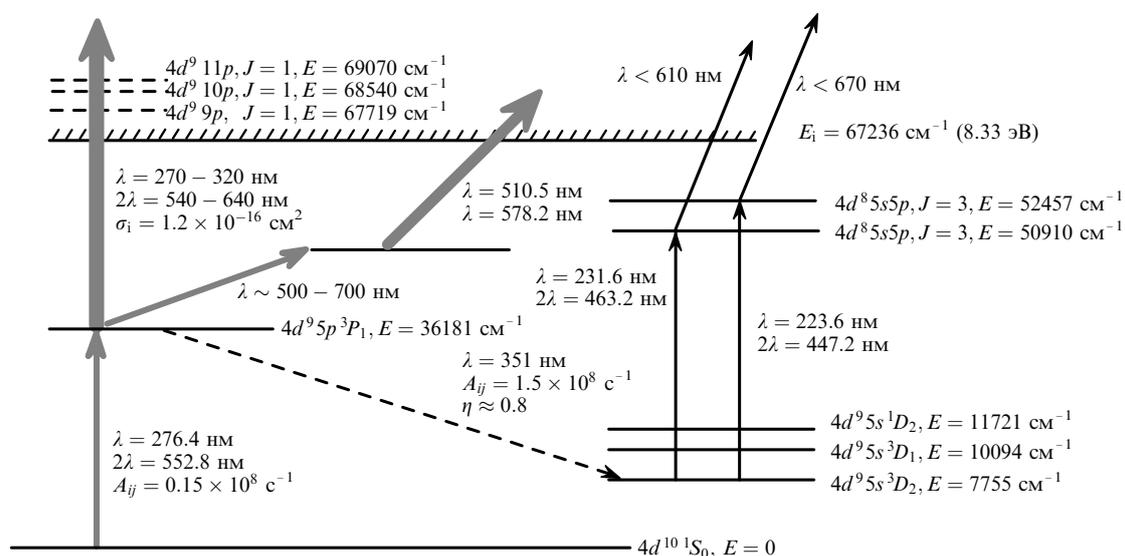


Рис.8. Схемы фотоионизации Pd ( $E_i$  – энергия ионизации).

нием с  $\lambda = 276.4$  нм. Образовавшееся состояние  $4d^9 5p^3 P_1$  спонтанно распадается в состояния  $4d^9 5s^1 D_2$  и  $4d^9 5s^3 D_2$ . Далее в качестве основного селективирующего перехода можно выбрать один из переходов в состояния с конфигурацией  $4d^8 5s 5p$ . Длины волн этих переходов составляют 255.1 нм ( $^1D_2 \rightarrow E = 50910$  см $^{-1}$ ), 245.4 нм ( $^1D_2 \rightarrow E = 52457$  см $^{-1}$ ), 231.7 нм ( $^3D_2 \rightarrow E = 50910$  см $^{-1}$ ) и 223.6 нм ( $^3D_2 \rightarrow E = 52457$  см $^{-1}$ ). Ионизация из состояний с  $E = 50910.4$  см $^{-1}$ ,  $J = 3$  и  $E = 52457.0$  см $^{-1}$ ,  $J = 3$  осуществляется либо через автоионизационные ридберговские состояния  $4d^9 np$ ,  $4d^9 nf$  перестраиваемыми лазерами на красителях, накачиваемых лазерами на парах меди, либо непосредственно линиями медного лазера.

Эти схемы рассмотрены в [38–40]. Приведем результаты новых расчетов, опирающихся на данные недавней работы [40].

**Использование эффекта Зеемана.** Фактором, мешающим обеспечению высокой селективности схемы ступенчатой фотоионизации редкого изотопа, часто является блендирование, возникающее из-за сверхтонкого расщепления линий изотопов с отличными от нуля моментами ядер. Для этих случаев, в частности для выделения  $^{102}\text{Pd}$ , в работе [39] предложено использовать эффект Зеемана для сдвига блендирующих линий за пределы спектральной ширины линии лазерного излучения и доплеровской ширины атомных линий.

При расчетах эффекта Зеемана для получения энергий подуровней уровня с моментом  $J$  и вероятностей переходов во внешнем статическом магнитном поле необходимо диагонализировать построенную на базисе невозмущенных волновых функций матрицу возмущения атома магнитным полем  $W_{ij} = \langle JF_i M_i | V | JF_j M_j \rangle + \delta_{ij} \varepsilon_i$ . Здесь  $V = g_j \mu_B B \hat{J}$  – оператор возмущения ( $g_j$  – гиромагнитное отношение, или  $g$ -фактор,  $g_{3P_1} = 1.396$ );  $\mu_B$  – магнетон Бора;  $B$  – напряженность магнитного поля;  $\hat{J}$  – оператор момента электронной оболочки;  $F = J + I$  – полный момент подуровня СТС ( $I$  – момент ядра); индексы  $i, j$  нумеруют подуровни СТС уровня  $J$  (с полными моментами  $F_i$  и проекциями  $M_i$ );  $\varepsilon_i$  – энергия  $i$ -го уровня СТС в отсутствие магнитного поля.

Анализ результатов расчетов показывает, что при напряженности (индукции) магнитного поля более 1500 Гс частоты переходов на магнитные подуровни в  $^{105}\text{Pd}$ , сильнее всего мешающем селективной ионизации  $^{102}\text{Pd}$ , отодвигаются на расстояния не менее 100 МГц от частоты рабочего перехода, что может обеспечить селективность ионизации изотопа 102.

Отметим, что присутствие магнитного поля предъявляет требования к взаимной ориентации линейно поляризованного лазерного излучения и магнитного поля: для эффективного возбуждения уровня вектор напряженности электрического поля лазерного пучка должен быть параллелен вектору магнитного поля, а вектор направления пучка – перпендикулярен вектору  $B$ .

**Расчеты спектральной зависимости фототока и эффективности ионизации.** Для того чтобы получить спектр фототока в зависимости от длины волны лазера, стимулирующего переход  $4d^{10} 1S_0 \rightarrow 4d^9 5p^3 P_1$ , и от напряженности магнитного поля, была развита многоуровневая кинетическая модель фотоионизации, аналогичная использовавшейся для описания фотоионизации иттербия. Эта модель учитывает одновременную ионизацию всех изотопов, попадающих в спектр возбуждающего лазера, и соответственно дает возможность определить ре-

Табл.4. Вероятности переходов в четных изотопах Pd, восстановленные по данным работы [42].

Переход	$A_{ij}$ (с $^{-1}$ )
$4d^9 5p^3 P_1 \rightarrow 4d^{10} 1S_0$	$1.5 \times 10^7$
$4d^9 5p^3 P_1 \rightarrow 4d^9 5s^3 D_2$	$1.5 \times 10^8$
$4d^9 5p^3 P_1 \rightarrow 4d^9 5s^3 D_1$	$2.1 \times 10^7$
$4d^9 5p^3 P_1 \rightarrow 4d^9 5s^1 D_2$	$4.3 \times 10^6$

Табл.5. Вероятности переходов между подуровнями СТС в  $^{105}\text{Pd}$ , восстановленные по данным работы [42].

Переход	$A_{ij}$ (с $^{-1}$ )
$4d^9 5p^3 P_1 F = 3/2 \rightarrow 4d^{10} 1S_0 F = 5/2$	$1.5 \times 10^7$
$4d^9 5p^3 P_1 F = 5/2 \rightarrow 4d^{10} 1S_0 F = 5/2$	$1.5 \times 10^7$
$4d^9 5p^3 P_1 F = 7/2 \rightarrow 4d^{10} 1S_0 F = 5/2$	$1.5 \times 10^7$
$4d^9 5p^3 P_1 F = 3/2 \rightarrow 4d^9 5s^3 D_2 F = 1/2$	$4.6 \times 10^7$
$4d^9 5p^3 P_1 F = 3/2 \rightarrow 4d^9 5s^3 D_2 F = 3/2$	$6.4 \times 10^7$
$4d^9 5p^3 P_1 F = 3/2 \rightarrow 4d^9 5s^3 D_2 F = 5/2$	$4.3 \times 10^7$
$4d^9 5p^3 P_1 F = 5/2 \rightarrow 4d^9 5s^3 D_2 F = 3/2$	$1.8 \times 10^7$
$4d^9 5p^3 P_1 F = 5/2 \rightarrow 4d^9 5s^3 D_2 F = 5/2$	$5.6 \times 10^7$
$4d^9 5p^3 P_1 F = 5/2 \rightarrow 4d^9 5s^3 D_2 F = 7/2$	$7.9 \times 10^7$
$4d^9 5p^3 P_1 F = 7/2 \rightarrow 4d^9 5s^3 D_2 F = 5/2$	$5.5 \times 10^6$
$4d^9 5p^3 P_1 F = 7/2 \rightarrow 4d^9 5s^3 D_2 F = 7/2$	$3.3 \times 10^7$
$4d^9 5p^3 P_1 F = 7/2 \rightarrow 4d^9 5s^3 D_2 F = 9/2$	$1.1 \times 10^8$

Табл.6. СТС и изотопическая структура перехода  $4d^9 5p^3 P_1 \rightarrow 4d^{10} 1S_0$  [42].

$A$	$F$	$\Delta\nu$
105	3/2	446
105	5/2	125
102	1	125
104	1	55
$^{105}\text{Pd}^*$	–	0
106	1	–18
108	1	–81
110	1	–147
105	7/2	–317

\* – центр тяжести СТС  $^{105}\text{Pd}$

зультирующее обогащение при селективной фотоионизации.

Рассматривалась задача о фотоионизации оптически тонкого слоя паров Pd. Изотопный состав паров полагался естественным. Спектр излучения лазера мог выбираться гауссовым либо лоренцевым (задавались ширина линии и вид спектра); спектральный состав излучения ионизирующего лазера несуществен как при ионизации в континуум, так и при ионизации через АИС (из-за большой ширины последнего).

Решение проводилось в два этапа. На первом решалась задача об эффекте Зеемана для изотопов палладия в заданном магнитном поле – определялись энергии всех магнитных подуровней уровня  $4d^9 5p^3 P_1$  всех изотопов палладия и вычислялись вероятности разрешенных переходов между ними. Вероятности радиационных переходов и структура перехода  $4d^9 5p^3 P_1 \rightarrow 4d^{10} 1S_0$  (по данным [42]) приведены в табл.4–6.

Среда (пары Pd) характеризовалась плотностью и распределением атомов по проекции скорости на направление распространения лазерных пучков (атомы среды делились на  $n = 5 - 15$  групп). Для каждой скоростной

группы записывались уравнения баланса (в приближении интенсивностей) для полной системы всех подуровней уровня  $4d^9 5p^3 P_1$  для каждого из изотопов Pd. Распределение атомов по скоростям могло задаваться произвольным; в приводимых ниже результатах расчетов оно полагалось максвелловским (гауссовым). Система уравнений баланса решалась стандартным методом Рунге–Кутты 4-го порядка.

В системе уравнений баланса учитывались следующие процессы: фотовозбуждение (девозбуждение) лазерным излучением уровня  $^3P_1$ , затухание этого уровня вследствие радиационных переходов в состояния, не учтенные в рамках данной модели, и фотоионизация в континуум возбуждающим и ионизирующим лазерами (с сечением  $\sigma_i = 1.2 \times 10^{-16} \text{ см}^2$ ). Отметим, что скорость релаксации подуровней уровня  $^3P_1$  в силу соотношений ортогональности и полноты для  $3jm$ -символов одинакова для всех подуровней (от  $JIFM$  не зависит).

Поляризация лазерного излучения считалась смесью линейной поляризации с левой и правой круговыми поляризациями (доля каждой из них в интенсивности задавалась).

Расчеты показывают (рис.9), что в отсутствие магнитного поля получить требуемое обогащение по изотопу  $^{102}\text{Pd}$  невозможно из-за блендирования его линии линейной изотопа  $^{105}\text{Pd}$ . В магнитном поле 2000 Гс требуемое обогащение (при приемлемом КПД ионизации) достигается в сравнительно узком диапазоне отстроек частот селектирующего лазера (0 – 60 МГц).

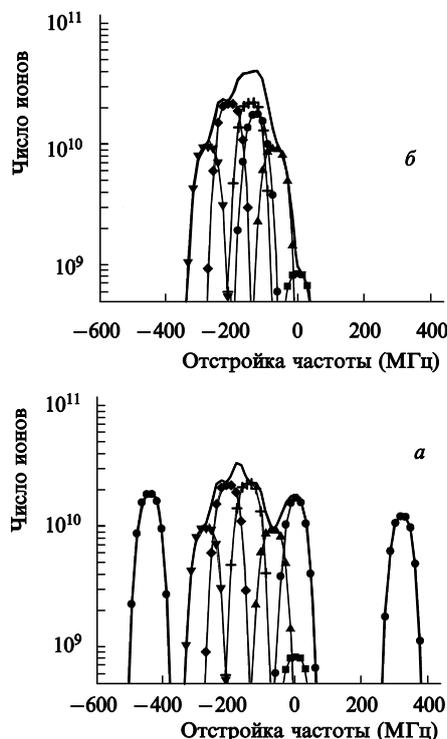


Рис.9. Зависимости изотопического состава ионов от отстройки частоты первого (селектирующего) лазера в отсутствие магнитного поля (а) и в магнитном поле 2000 Гс (б) при пиковой интенсивности первого лазера  $500 \text{ Вт/см}^2$ , второго –  $50 \text{ кВт/см}^2$ . Отстройка отсчитана от частоты перехода в  $^{102}\text{Pd}$ , ширины атомных линий и линии лазера положены равными 30 МГц, поляризация излучения считалась линейной. Сплошная кривая – полное число ионов, образующихся в зоне фотоионизации за импульс, кривые с точками – числа ионов изотопов палладия с массовыми числами, равными 102 (■), 104 (▲), 105 (●), 106 (×), 108 (◆), 110 (▼).

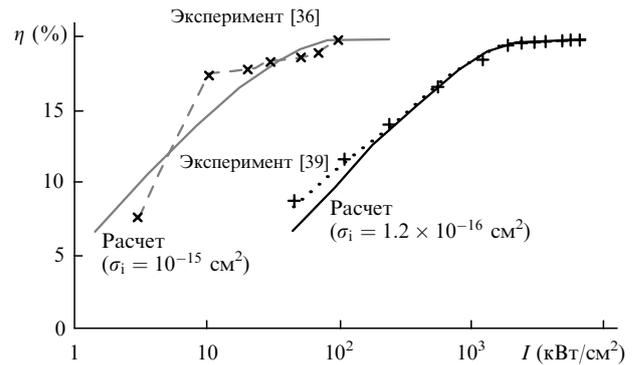


Рис.10. Зависимость эффективности двухступенчатой ионизации палладия от интенсивности лазерного излучения в импульсе.

### 3.2. Результаты экспериментов

**Сечение фотоионизации.** В работе [39] проведены измерения зависимости эффективности двухступенчатой ионизации (с использованием перехода  $4d^{10}S_0 \rightarrow 4d^9 5p^3 P_1$ ,  $\lambda = 276.4 \text{ нм}$ ) от интенсивности лазерного излучения. Показано, что для эффективной (свыше 50 %) двухступенчатой ионизации палладия излучением с длительностью импульсов 10 нс и частотой следования 10 кГц требуется средняя интенсивность излучения более  $100 \text{ Вт/см}^2$ . Результаты сопоставления расчетных и экспериментальных данных для эффективности двухступенчатой ионизации позволяют дать оценку сечения фотоионизации состояния  $4d^9 5p^3 P_1$ :  $\sigma_i \approx 10^{-16} \text{ см}^2$ . Отметим, что эти результаты не согласуются с результатами работы [36] (рис.10). Требования к интенсивности лазерного излучения, определенные в экспериментах [39], оказываются примерно на порядок большими, чем следует из работы [36]. Соответственно сечение фотоионизации, полученное в экспериментах [36], также на порядок больше:  $\sigma_i \approx 10^{-15} \text{ см}^2$ . Такое сечение обычно имеет место вблизи автоионизационных состояний. Поскольку в рассматриваемой области континуума автоионизационных состояний нет, результаты измерений [39] представляются более надежными.

**Масс-спектры обогащенных изотопов.** Зависимости масс-спектров палладия от частоты лазерного излучения первого канала, соответствующего возбуждению, исследовались в [40]. Характерные масс-спектрограммы с преимущественным обогащением  $^{104}\text{Pd}$  и  $^{105}\text{Pd}$ , полученные в отсутствие магнитного поля в зоне фотоионизации, приведены на рис.11, 12. Максимальное содержание изотопа 102 в масс-спектрах, достигнутое 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 изотопа 102 частота лазера первого канала настраивалась по максимальному обогащению изотопом  $^{102}\text{Pd}$ . Линейная поляризация излучения лазера первого канала в зоне фотоионизации была коллинеарна напряженности магнитного поля. Среднее значение напряженности магнитного поля в зоне селективной фотоионизации оценивалось по зеемановским сдвигам частот переходов в  $^{105}\text{Pd}$  и составляло  $2.4 \pm 0.5 \text{ кГс}$ . Характерная масс-спектрограмма, полученная при выделении  $^{102}\text{Pd}$  в магнитном поле, приведена на рис.13.

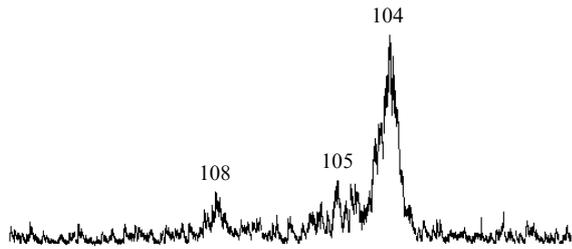


Рис.11. Характерная масс-спектрограмма с преимущественным обогащением изотопом  $^{104}\text{Pd}$  в отсутствие магнитного поля. Здесь и на рис. 12, 13 массовые числа изотопов указаны у пиков спектрограммы, содержание  $^{104}\text{Pd}$  в масс-спектре составляет 67 %.

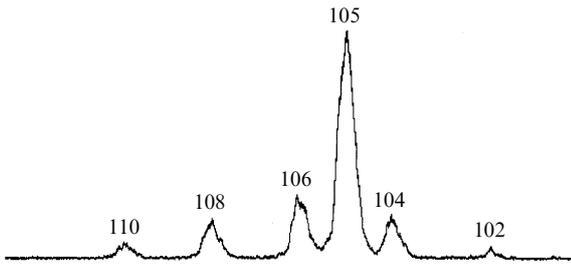


Рис.12. Характерная масс-спектрограмма с преимущественным обогащением изотопом  $^{105}\text{Pd}$  в отсутствие магнитного поля. Содержание  $^{105}\text{Pd}$  в масс-спектре составляет 60 %.

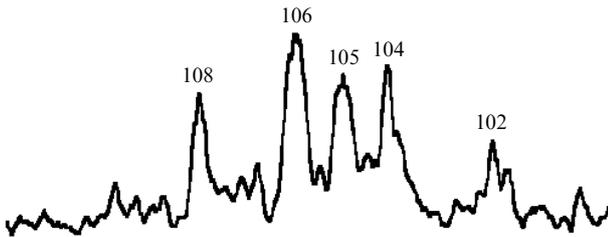


Рис.13. Характерная масс-спектрограмма с преимущественным обогащением изотопом  $^{102}\text{Pd}$ , полученная в магнитном поле 2400 Гс.

В экспериментах по выделению  $^{102}\text{Pd}$  в магнитном поле содержание изотопа 102 в масс-спектрах изменялось в пределах 10 % – 18 % (по сравнению с его естественным содержанием 1 %). Кроме того, удалось достичь существенного обогащения других изотопов (рис.11,12):  $^{104}\text{Pd}$  – до 70 % (при естественном содержании 11.4 %),  $^{105}\text{Pd}$  – до 60 % (22.33 %).

Эксперименты [40] по измерению спектров изотопов при сканировании линии возбуждения перехода  $4d^{10}1S_0 \rightarrow 4d^95p^3P_1$  качественно согласуются с результатами приведенных выше расчетов, основанных на спектроскопических данных работы [42], и не согласуются с соответствующими данными, приведенными в [36]. Данные работы [42] представляются несравненно более надежными.

#### 4. Заключение

Подытожим основные результаты работ по выделению редких изотопов.

1. Удалось решить ключевые проблемы лазерного выделения весовых количеств изотопа  $^{168}\text{Yb}$  с исходно низким его содержанием в естественной смеси. Стоимость высокообогащенного (более 25 %)  $^{168}\text{Yb}$  высока, поскольку его содержание в естественной смеси очень мало. Поэтому выгодно производство уже одного грамма

$^{168}\text{Yb}$  в месяц. Следовательно, впервые в мире методом ЛРИ осуществлено коммерчески выгодное производство обогащенного изотопа.

2. На основе селективной двухступенчатой ионизации достигнуто существенное обогащение различных изотопов палладия:  $^{102}\text{Pd}$  – до 18 % (естественное содержание 1 %)  $^{104}\text{Pd}$  – до 70 % (11.4 %),  $^{105}\text{Pd}$  – до 60 % (22.33 %).

Таким образом, метод лазерной селективной фотоионизации представляется перспективным для получения других редких изотопов, используемых в медицине.

1. Карлов Н.В., Прохоров А.М. *УФН*, **118** (3), 583 (1976).
2. Карлов Н.В., Крынецкий Б.Б., Мишин В.А., Прохоров А.М. *УФН*, **127** (4), 593 (1979).
3. *Труды ФИАН*, **114** (М.: Наука, 1979).
4. Крынецкий Б.Б., Мишин В.А., Прохоров А.М. *ЖПС*, **54** (4), 558 (1991); *Препринт ИОФАН № 70* (М., 1990).
5. Летохов В.С., Мур С.Б. *Квантовая электроника*, **3** (2), 248 (1976).
6. Letokhov V.S., Mishin V.L., Puzetzy A.A. *Progr. Quantum Electron.*, **5** (3), 139 (1977).
7. Амбарцумян Р.В., Калинин В.Н., Летохов В.С. *Письма в ЖЭТФ*, **13**, 305 (1971).
8. Яковленко С.И. *Квантовая электроника*, **25** (11), 971 (1998).
9. Yakovenko S.I. *Laser Part. Beams*, **16** (4), 541 (1998).
10. Yakovlenko S.I. *Adv. Laser Opt. Res.*, **1**, 53 (2002).
11. Летохов В.С. А.с. № 784679; *БИ*, № 8, 308 (1982).
12. Mishin V.I., Fedoseyev V.N., Kluge H.J., Letokhov V.S., et al. *Nucl. Instrum. Meth.*, **73** (4), 550 (1993).
13. Держиев В.И., Мушта В.М., Яковленко С.И. *Способ разделения изотопов иттербия*. Патент РФ RU 2119816 С1. А.с. № 96111686/25. *Изобретения*, № 28, 10 (1998).
14. 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).
15. 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).
16. Держиев В.И., Егоров А.Г., Ильин А.А., Кострица С.А., Кузнецов В.А., Михальцов Л.А., Мушта В.М., Половцев А.А., Сапожков А.Ю., Ткачев А.Н., Чаушанский С.А., Яковленко С.И. *Докл. II Всерос. конф. «Физико-химические процессы при селекции атомов и молекул»* (М.: ЦНИИАТОМИНФОРМ, 1997, с. 57–61).
17. 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. *Докл. II Всерос. конф. «Физико-химические процессы при селекции атомов и молекул»* (М.: ЦНИИАТОМИНФОРМ, 1997, с. 83–85).
18. 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).
19. Derzhiev V.I., Kuznetsov V.A., Mikhal'tsov L.A., Mushta V.M., Sapozhkov A.Yu., Tkachev A.N., Chaushanskii S.A. *Proc. SPIE Int. Soc. Opt. Eng.*, **3403**, 242 (1998).
20. Ткачев А.Н., Яковленко С.И. *Квантовая электроника*, **23** (9), 860 (1996).
21. Ткачев А.Н., Яковленко С.И. *Квантовая электроника*, **24** (8), 759 (1997).
22. Голятина Р.И., Ткачев А.Н., Яковленко С.И. *Квантовая электроника*, **25** (8), 764 (1998).
23. Прохоров А.М., Ткачев А.Н., Яковленко С.И. *ДАН РФ*, **329** (6), 729 (1993).
24. Майоров С.А., Ткачев А.Н., Яковленко С.И. *Математическое моделирование*, **6** (9), 13 (1994).
25. Mayorov S.A., Tkachev A.N., Yakovlenko S.I. *Laser Phys.*, **4** (3), 624 (1994).
26. Golyatina R.I., Tkachev A.N., Yakovlenko S.I. *Laser Phys.*, **7** (2), 449, (1997).
27. Голятина Р.И., Ткачев А.Н., Яковленко С.И. *Кр. сообщ. физ. ФИАН*, № 1–2, 92 (1997).
28. Голятина Р.И., Ткачев А.Н., Яковленко С.И. *ЖТФ*, **68** (5), 771 (1999).

29. Golyatina R.I., Tkachev A.N., Yakovlenko S.I. *Laser Phys.*, **8** (5), 1095 (1998).
30. Ткачев А.Н., Яковленко С.И. *Квантовая электроника*, **20** (11), 1117 (1993).
31. Савельев В.В., Яковленко С. И. *Квантовая электроника*, **23** (11), 1020 (1996).
32. Савельев В.В., Яковленко С. И. *Кр. сообщ. физ. ФИАН*, № 11 – 12, 57 (1996).
33. Savel'ev V.V., Yakovlenko S.I. *Laser Phys.*, **7** (2), 437 (1997).
34. Савельев В.В., Яковленко С. И. *Квантовая электроника*, **24** (10), 939 (1997).
35. Golyatina R.I., Syts'ko Yu.I., Yakovlenko S.I. *Laser Phys.*, **8** (4), 860 (1998).
36. Yamaguchi H., Sasao N. *Proc. Intern. Symp. Adv. Nuclear Energy Res.* (Osai, Japan, 1989) (Токуо: JAERI, 1990, p.129).
37. Sasao N., Yamaguchi H. US Patent US005110562A, filed Feb. 28, 1990. Date of Patent May 5, 1992.
38. Ткачев А.Н., Яковленко С.И. *Квантовая электроника*, **32** (7), 164 (2002).
39. Держиев В.И., Дякин В.М., Ильяев Р.И., Михальцов Л.А., Селемир В.Д., Сидоров И.И., Ткачев А.Н., Чаушанский С.А., Яковленко С.И. *Квантовая электроника*, **33** (6), 553 (2002).
40. Держиев В.И., Дякин В.М., Ильяев 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*, **33**, 553 (2003).
41. Yakovlenko S.I. *Producing of  $^{168}\text{Yb}$  of weighable amounts by AVLIS method and selective photo-ionization of palladium. Proc. SPIE Int. Soc. Opt. Eng. in press.*
42. Van Duijn E.J., Witte S., Zinkstok R., Hogervorst W. *Eur. Phys. J. D.*, **19**, 25 (2002).
43. Parr A.C., Elder F.A. *J. Chem. Phys.*, **49** (6), 2665 (1968).
44. Козлов М.Г., Коточигова С.А., Николаев В.Н. *Оптика и спектроскопия*, **41** (1), 10 (1976).
45. Yi J., Lee J., Kong H.J. *Phys. Rev. A.*, **51**(4), 3053 (1995).
46. Лябин Н.А., Чурсин А.Д., Угольников С.А., Королева М.Е., Казарян М.А. *Квантовая электроника*, **31** (3), 191 (2001).
47. Жерихин А.Н., Летохов В.С., Мишин В.И., Беляев В.П., Евтюнин А.Н., Лесной М.А. *Квантовая электроника*, **8** (6), 1340 (1981).
48. Дорофеев С.Н., Жильцов В.И., Климашина А.Т., Мнускин В.Е., Мишин В.И., Никифоров В.Г., Тринчук Б.О., Токарева А.Н., Фёдоров В.А. *ЖПС*, **41** (5), 514 (1984).



Обсуждение результатов с Н.Г. Басовым (1964 г.)