

# Разработка лазерного (АВЛИС) метода получения весовых количеств высокообогащенного изотопа $^{150}\text{Nd}$

А.П.Бабичев, **И.С.Григорьев**, А.И.Григорьев, А.П.Доровский, А.Б.Дьячков, С.К.Ковалевич, В.А.Кочетов, В.А.Кузнецов, В.П.Лабозин, А.В.Матрахов, С.М.Миронов, С.А.Никулин, А.В.Песня, Н.И.Тимофеев, В.А.Фирсов, Г.О.Цветков, Г.Г.Шаталова

*Приведены результаты первого этапа экспериментальной разработки технологии получения лазерным фотоионизационным методом весовых количеств высокообогащенного изотопа  $^{150}\text{Nd}$ . Созданы испаритель и лазеры, опробованы различные схемы облучения неодимового пара и схема экстракции фотоионов. При длине испарителя 27 см достигнута производительность продукта 40 мг/ч при обогащении ~60 % и 25 мг/ч при обогащении ~65 %. Приводится оценка себестоимости строительства установки и получения изотопа  $^{150}\text{Nd}$  в количестве 50 кг, который предполагается использовать при определении массы нейтрино. Эта оценка показывает возможное снижение стоимости производства в 5–7 раз по сравнению с электромагнитным методом.*

**Ключевые слова:** лазер на парах меди, лазер на красителях, селективная фотоионизация, разделение изотопов, изотоп  $^{150}\text{Nd}$ , двойной бета-распад, масса нейтрино.

|   | Содержание |
|---|------------|
| 1. Введение . . . . .   | 879        |
| 2. Испарение неодима . . . . .  | 880        |
| 3. Экспериментальная установка . . . . .  | 881        |
| 3.1. Общая конфигурация   |            |
| 3.2. Вакуумный модуль (сепаратор)   |            |
| 3.3. Лазеры накачки   |            |
| 3.4. Перестраиваемые лазеры на красителях   |            |
| 4. Выбор схемы фотоионизации . . . . .  | 883        |
| 5. Производительность и селективность АВЛИС-процесса . . . . .  | 885        |
| 5.1. Внешние и внутренние параметры   |            |
| 5.2. Определение концентрации фотоионов целевого изотопа в сепараторе и других внутренних параметров                  |            |
| 5.3. Прямые измерения вероятности фотоионизации   |            |
| 6. Результаты экспериментов по наработке неодима, обогащенного изотопом $^{150}\text{Nd}$ , и их обсуждение . . . . . | 888        |
| 7. Выводы . . . . .   | 889        |
| 8. Литература . . . . .   | 889        |

## 1. Введение

Исследование природы нейтрино – одна из важнейших и интереснейших проблем фундаментальной физики, формирующих представления о физическом мире, в котором мы живем.

Одним из путей получения новой информации о природе нейтрино является изучение двойного безнейтринного  $\beta$ -распада ( $2\beta\nu$ ). Редкоземельный изотоп  $^{150}\text{Nd}$  (с природным содержанием 5.6 %) считается наиболее подходящим веществом для обнаружения  $2\beta\nu$ -распада, по-

скольку масса дочернего изотопа  $^{150}\text{Sm}$  на  $\sim 3.3$  МэВ меньше массы исходного неодима и образующиеся  $\beta$ -частицы имеют достаточно высокую энергию для надежной идентификации и измерения их энергии. Теоретическая вероятность безнейтринного  $2\beta$ -распада увеличивается с ростом энергии перехода и заряда ядра и для  $^{150}_{60}\text{Nd}$  она выше, чем для  $^{48}_{20}\text{Ca}$  и  $^{76}_{32}\text{Ge}$  [1]. Оценка ожидаемого периода полураспада в процессе  $2\beta\nu$  (если он существует) составляет более  $10^{24}$  лет, поэтому минимально необходимое количество неодима, обогащенного изотопом  $^{150}\text{Nd}$ , для достоверных измерений составляет не менее 10 кг [2].

Редкоземельные элементы не имеют летучих соединений, удобных для разделения изотопов хорошо развитым центробежным способом. Стоимость получения изотопа  $^{150}\text{Nd}$  на магнитных масс-сепараторах довольно высока. В качестве альтернативного варианта возможна наработка этого изотопа лазерным методом. Оценки, проведенные в настоящей работе на основе выполненных экспериментов, позволяют надеяться на зна-

А.П.Бабичев, И.С.Григорьев, А.И.Григорьев, А.П.Доровский, А.Б.Дьячков, С.К.Ковалевич, В.А.Кочетов, В.А.Кузнецов, В.П.Лабозин, А.В.Матрахов, С.М.Миронов, С.А.Никулин, А.В.Песня, Н.И.Тимофеев, В.А.Фирсов, Г.О.Цветков, Г.Г.Шаталова. РНЦ «Курчатовский институт», Россия, 123182 Москва, пл. акад. Курчатова, 1; e-mail: flash@imp.kiae.ru

Поступила в редакцию 25 марта 2005 г., после доработки – 18 августа 2005 г.

чительное снижение затрат при производстве обогащенного неодима за счет применения фотоионизационного метода.

Плотность неодимового пара достигает значений, достаточных для весовых наработок, при температурах испарения 1430–1530 °С. Потенциал ионизации неодима равен ~5.5 эВ. Изотопический сдвиг  $\Delta v_{is}$  для некоторых переходов с нижнего на первый возбужденный уровень составляет в атоме неодима ~1.12 ГГц. Четный изотоп  $^{150}\text{Nd}$  имеет в спектрах поглощения одну нерасщепленную, четко обособленную линию. Перечисленные характеристики нуклида  $^{150}\text{Nd}$  являются основой для разработки масштабного лазерного фотоионизационного метода получения высокообогащенного изотопа  $^{150}\text{Nd}$ .

Фотоионизационный метод, или атомный вариант лазерной изотопной сепарации (АВЛИС), основан на селективной фотоионизации разреженных паров какого-либо элемента излучением двух или более лазеров. Образованные таким образом ионы  $^{150}\text{Nd}$  экстрагируются из потока пара на коллектор при помощи электрического поля. Остальные атомы продолжают двигаться по первоначальной траектории, оставаясь нейтральными, и улавливаются сборниками отвала. При этом, поскольку спектрально узкий луч лазера настроен на линию поглощения одного из изотопов, происходит выделение (выборка) одного изотоба, а не разделение изотопов, как в традиционных методах.

АВЛИС, как и другие методы разделения изотопов, имеет свои достоинства и недостатки. Перечислим наиболее яркие особенности этого метода:

- Универсальность, обусловленная тем, что практически любой элемент может быть фотоионизован, включая элементы, не имеющие летучих соединений.
- Высокая селективность в одном цикле.
- Возможность очистки, т.е. удаления изотопа или элемента с исчезающе малым содержанием в исходной смеси.
- Отсутствие радиолиза рабочего вещества, позволяющее обрабатывать радиоактивные смеси.
- Высокая удельная производительность на единицу площади, занимаемой разделительной установкой, которая делает установку компактной и легко обслуживаемой.
- Возможность увеличения производительности установки простым добавлением испарительных модулей, связанная с тем, что, по нашему опыту, лазерный луч может распространяться на расстояния до сотни метров без существенного изменения способности производить фотоионизацию.

Первые теоретические разработки методов разделения изотопов с помощью лазерного излучения относятся к концу 60-х годов прошлого века [3–5]. Затем последовали модельные эксперименты по фотоионизации рубидия [6] и урана [7] и, наконец, демонстрационные эксперименты по разделению изотопов урана [8] и кальция [9], а также более поздние эксперименты [10–12], выполненные в лабораториях разных стран. Особо нужно отметить цикл работ по селективной фотоионизации изотопов элементов группы лантаноидов, экспериментально показавших осуществимость этого процесса [13].

Наша задача экспериментального освоения лазерного выделения изотопа  $^{150}\text{Nd}$  на первом этапе включала в себя разработку и создание испарителя, вакуумного модуля и лазеров, а также проведение всего рабочего цикла

– от загрузки сырья до получения небольших количеств изотопа в товарном виде. Подобное исследование для изотопов иттербия проведено в работе [12]. Основное отличие комплекса решаемых в настоящей работе задач от [12] заключалось, по-видимому, в том, что вследствие более высокой природной концентрации целевого изотопа  $^{150}\text{Nd}$  засорение коллектора потоком с природной концентрацией играет сравнительно небольшую роль. Это позволяет существенно упростить систему сбора фотоионов, что в итоге приводит к значительному увеличению удельной производительности.

Работа проводилась по инициативе и при поддержке ГНЦ РФ «Институт теоретической и экспериментальной физики имени А.И.Алиханова» и носила конверсионный характер.

## 2. Испарение неодима

Температура плавления неодима равна 1024 °С, выражение для упругости насыщающего пара (в Па) согласно [14] можно представить в виде

$$p = \exp\left(23.76 - \frac{37900}{T}\right), \quad (1)$$

где  $T$  – температура пара в кельвинах. При температуре 1400 °С равновесная плотность неодимового пара составляет  $1.3 \times 10^{14} \text{ см}^{-3}$ . Эта температура может служить отправной точкой при конструировании испарителя.

Обычно жидкие металлы весьма реакционноспособны и восстанавливают даже тугоплавкие окислы. Тантал и вольфрам практически не взаимодействуют с расплавленным неодимом [15] и могут служить тигельным материалом при его испарении. Однако стоимость тантала высока, а массивные блоки вольфрама с трудом поддаются обработке. Поэтому с целью поиска более доступных материалов был проведен цикл экспериментальных исследований взаимодействия жидкого неодима с молибденом, графитом и ниобием при температурах 1400–1450 °С. Молибден и ниобий оказались достаточно устойчивыми к расплавленному неодиму [16] и в дальнейшем использовались для экспериментальных работ с жидким неодимом.

Проведенные эксперименты одновременно выявили еще одну особенность жидкого неодима – способность активно смачивать металлы и связанную с ней его ползучесть. Смачивая материал, жидкий неодим забивает зазоры между тепловыми экранами, что лишает их экранирующей способности, и температурный режим испарителя изменяется. В исследованных конструкциях это обстоятельство учитывалось, и поверхностное расположение неодима по возможности сводилось к минимуму.

Плотность атомного пара неодима в зоне взаимодействия с лазерным лучом измерялась по поглощению тестирующего лазерного луча. Такой прием полностью исключает регистрацию димеров, кластеров и капель, которая возможна при использовании кварцевых измерителей потока. На рис.1 приведены экспериментальные значения плотности неодимового пара над испарителем длиной 27 см, полученные методом лазерного просвечивания, расчетные значения длины свободного пробега над решеткой, уменьшающей угол раскрытия пучка  $\gamma$  до 60°, и относительная доля атомов  $\chi_{col}$ , испытывающих столкновения в  $1 \text{ см}^3$  потока над коллимирующей решет-

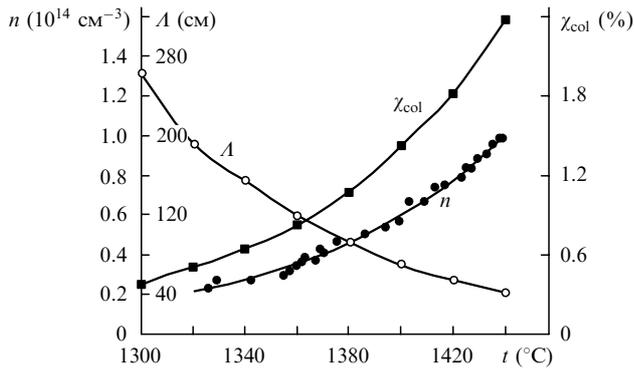


Рис.1. Экспериментальные значения плотности атомного пара неодима  $n$  на высоте 1.5 см над тиглем в отсутствие коллимирующих решеток, расчетные значения длины свободного пробега  $A$  над коллимирующей решеткой с ослаблением потока 10 : 1 и относительная доля атомов  $z_{col}$ , испытывающих столкновения в  $1 \text{ cm}^3$  потока над решеткой.

кой. Рассеяние атомов друг на друге и на молекулах остаточной атмосферы приводит к запылению коллектора исходным материалом, поэтому для получения высокой концентрации целевого изотопа необходимо уменьшать плотность испаряемых атомов.

При оптимизации процесса испарения изменялась конфигурация тигля и температура испарения. Накоп-

ленный опыт позволил создать стабильный испаритель с малым углом раскрытия атомного потока, скоростью испарения до 8 г/ч и ресурсом работы не менее 50 ч.

### 3. Экспериментальная установка

#### 3.1. Общая конфигурация

Атом неодима имеет потенциал ионизации 5.525 эВ [17, 18] и богатый спектр [19, 20], удобный для трехступенчатой фотоионизации излучением лазеров желто-оранжевого диапазона. Большинство лазерных красителей, предназначенных для работы в этом диапазоне, легко возбуждаются лазерами на парах меди (ЛПМ), и эффективность их генерации достигает 40 % – 50 % и более. Общая схема эксперимента при таких параметрах ионизируемого атома является традиционной и совпадает со схемой установок, применяющихся при разделении изотопов урана [21 – 23].

На рис.2 приведена общая схема экспериментальной установки (без блоков питания и вспомогательного оборудования), использовавшаяся в наших исследованиях селективной фотоионизации неодима. Отличительной особенностью этой установки является наличие контрольной камеры, позволяющей на протяжении всего эксперимента фиксировать селективность чисто лазерного

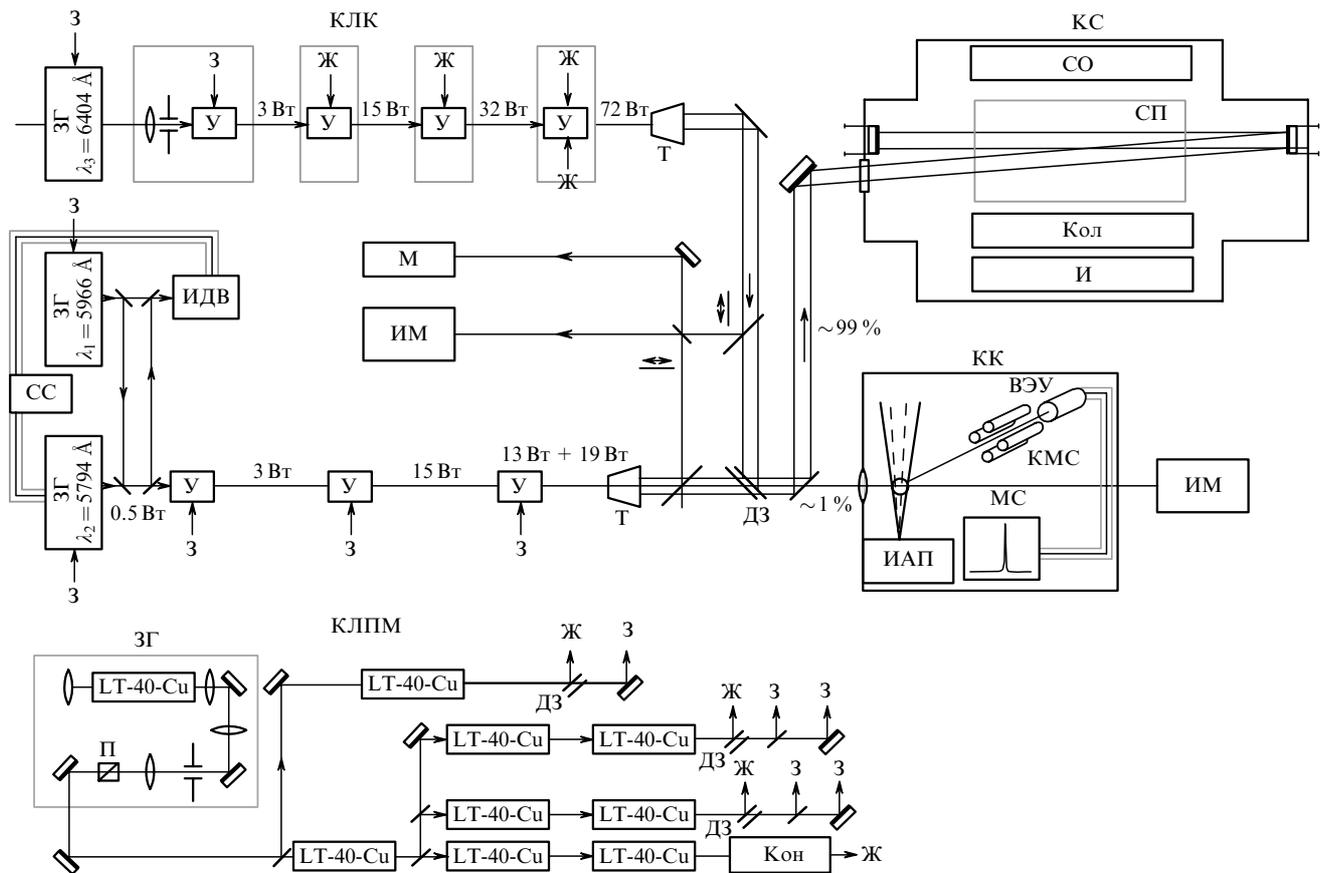


Рис.2. Общая схема экспериментальной установки:

КЛК – комплекс лазеров на красителях; КЛПМ – комплекс лазеров на парах меди; КК – контрольная камера; КС – камера сепаратора; ЗГ – задающий генератор; ИДВ – измеритель длин волн; ИМ – измеритель мощности; М – монохроматор; СС – система стабилизации; И – испаритель; Кол – коллиматор; СП – сборник продукта; СО – сборник отвала; Ж и З – желтый ( $\lambda = 5782 \text{ \AA}$ ) и зеленый ( $\lambda = 5106 \text{ \AA}$ ) лучи накачки; У – усилитель перестраиваемого лазера на красителе; ИАП – источник атомного пучка; КМС – квадрупольный масс-спектрометр; ВЭУ – вторичный электронный умножитель; МС – масс-спектр; Т – телескоп-расширитель луча; П – поляризатор; Кон – конвертер; ДЗ – дихроичное зеркало.

воздействия на спектрально узкий бесстолкновительный пучок атомов и затем, по окончании эксперимента, сравнивать ее с селективностью, получаемой в сепараторе при работе с высокими плотностями атомного пара и существенном уменьшении обогащения изотопа  $^{150}\text{Nd}$  за счет действия деселектирующих процессов.

Для того чтобы иметь возможность проводить оптимизацию процесса обогащения в сепараторе, масса наработанного продукта во время любого из экспериментов должна быть достаточной для его съема и независимого масс-анализа. Это условие предопределило выбор соответствующих мощностей лазеров, производительности источника пара и длительности сеансов наработки продукта. Масс-спектрометрический анализ получаемых наработок проводился в Лаборатории анализа состава Института молекулярной физики РНЦ «Курчатовский институт». Измерение веса наработанного нового продукта проводилось методом изотопного разбавления.

### 3.2. Вакуумный модуль (сепаратор)

Вакуумный модуль изготовлен из нержавеющей стали и имеет длину 125 см, рассчитанную на установку трех испарителей длиной 30 см каждый. Откачка камеры проводится паромасляным диффузионным насосом с производительностью 3000 л/с.

Экстракция целевого изотопа осуществляется электрическим полем, создаваемым электродом с напряжением 2000–2500 В. Обычно в наших экспериментах среднее значение фотоионного тока  $J_{\text{ав}} \sim 5 - 8$  мА при собирающей площади коллектора  $S_{\text{col}} = 220$  см<sup>2</sup>, а длительность токовых импульсов  $\Delta t_J$  составляла 20–25 мкс. Тот факт, что зарегистрированная длительность токовых импульсов в четыре раза меньше интервала между лазерными вспышками  $\Delta t = 100$  мкс, свидетельствует о полноте производимой экстракции. С другой стороны, на полноту экстракции указывает и то, что ограниченная скоростью рассасывания объемного заряда плотность мгновенного тока

$$j = \frac{J_{\text{ав}}}{S_{\text{col}} f \Delta t_J} \approx \frac{6.5 \times 10^{-3} \text{ А}}{25 \text{ мкс} \times 10^4 \text{ Гц} \times 220 \text{ см}^2} = 0.12 \frac{\text{мА}}{\text{см}^2}$$

(где  $f$  – частота следования лазерных импульсов) оказалась примерно в пять раз меньше плотности максимального неселективного тока, достигнутого в модельных экспериментах с настройкой лазеров на максимум фотоионизации. Это означает, что при увеличении плотности ионов в пять раз они также будут экстрагированы при том же напряжении электрода.

Высота  $h$  (протяженность вдоль потока атомов) и ширина  $b$  (размер в направлении, перпендикулярном потоку атомов и лазерному лучу) рабочего объема выбираются из условия максимально полного облучения испаренных атомов. Если ширина  $b$  определяется конструкцией испарителя и интенсивностью лазерных лучей, то высота  $h$  зависит от скорости испаренных атомов  $v$  и частоты следования лазерных импульсов  $f$ . На рис.3 представлены вероятности облучения  $\chi_{\text{рад}}$  испаренных атомов при их пролете через рабочий объем высотой  $h$ , полученные при усреднении по максвелловскому распределению скоростей с наиболее вероятным значением  $v_p$ . Следует отметить, что наличие атомов, облучаемых двумя лазерными импульсами, не означает, что возможно повторное возбуждение этих атомов, т. к. не все возбужденные, но не

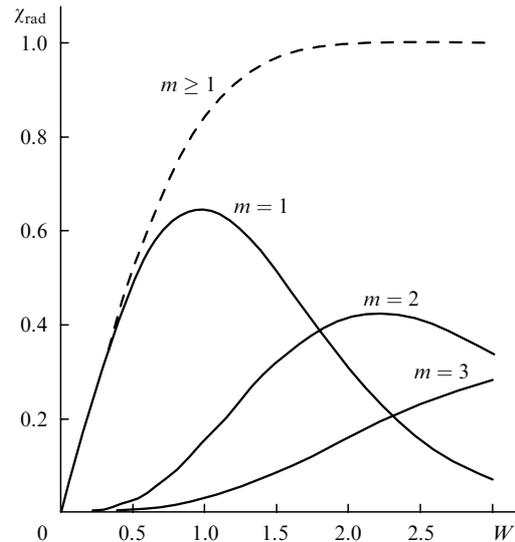


Рис.3. Вероятность облучения атомов  $\chi_{\text{рад}}$ , усредненная по максвелловскому распределению скоростей, в зависимости от параметра  $W = hf/(v_p \cos \theta_n)$ , где  $\theta_n$  – угол между направлением движения атома и нормалью к плоскости источника пара;  $m$  – число облучений одного атома.

ионизированные атомы к моменту прихода второго лазерного импульса (через 100 мкс) оказываются на нижнем рабочем уровне.

Для перекрытия возможно большего объема пара при сохранении достигнутого значения интенсивности лазерных лучей использовалась многопроходная зеркальная система, позволявшая отражать луч до 20 раз и заполнять светом весь рабочий объем.

### 3.3. Лазеры накачки

Комплекс лазеров накачки был создан на основе саморазогревных [24, 25] излучателей на парах меди LT-40 Cu и тиратронных модуляторов. ЛПМ оказались очень удобным источником излучения накачки для лазерных красителей. Они имеют высокую частоту повторения импульсов (10–20 кГц), большой КПД (1%–2%), высокую пиковую мощность (свыше 100 Вт) [25, 26] и подходят для создания усилительных каскадов. Полная выходная мощность излучения накачки составляет  $\sim 250$  Вт, при этом отношение интенсивностей зеленой и желтой компонент равно 5/4.

Специально созданный задающий генератор ЛПМ (рис.2) имеет малую неоднородность светового пятна ( $\sim 5\%$ ) и расходимость излучения  $\theta \leq 0.5$  мрад – качества, необходимые для дальнейшего эффективного усиления в цепочках усилителей. Достигнута стабильность оси диаграммы направленности светового луча  $\sim 0.05$  мрад/ч, что совместно с малой расходимостью обеспечивало достаточно устойчивую накачку лазеров на красителях.

Выходное излучение комплекса лазеров накачки формируется восемью усилителями LT-40 Cu. При длительности лазерных импульсов  $\sim 30$  нс временное согласование запуска всех усилителей должно быть очень точным. Созданная для этой цели электронная система [27] обеспечивает запуск усилителей в цепочках усиления с временным разбросом (джиттером) не более  $\pm 1$  нс. Среднее значение КПД, полученное для усилительной части комплекса лазеров накачки, составляет  $\sim 1.1\%$ .

Опыт эксплуатации лазерных излучателей LT-40 Cu выявил их высокую надежность, а также показал, что определенное удобство их использования связано с тем, что излучатель выполняется в отпаянном виде. Однако применение этих излучателей в цепочках усилителей недостаточно эффективно. Во-первых, окна излучателей LT-40 Cu изготавливаются непросветленными, и поэтому потери света уже на третьем усилителе становятся очень ощутимыми. Во-вторых, при работе отпаянная колба излучателя сильно нагревается, нагрев и конвекция воздуха около выходных окон приводят к искажениям формы и нестабильности положения лазерного пятна, которые в значительной мере устранялись путем экранирования луча тонкостенными металлическими трубами. Тем не менее с целью совершенствования конструкции излучателей нами изготовлен излучатель открытого типа с просветленными окнами, которые через металлическое уплотнение посажены на водоохлаждаемые концевые фланцы. При такой конструкции значительно улучшилось качество лазерного пятна и уменьшились потери света за проход в цепочке усилителей [28].

Для создания более мощного блока лазеров накачки был проведен цикл исследований по разработке усилителей с добавляемой мощностью 100–150 Вт. Для рядного канала диаметром 45 мм использовалась система с прокачкой рабочей смеси. Модулятор, построенный на основе двух тиратронов ТГИ-2000/35, работающих параллельно, обеспечивал вкладываемую в ряд мощность до 12 кВт. Рабочей смесью служила композиция  $\text{Ne} + (0.5\% - 1.5\%)\text{H}_2$ . При скорости прокачки 3 л/мин выходная мощность составила 92–99 Вт, а при небольшой добавке ( $\sim 0.5\%$ )  $\text{HCl}$  и увеличении скорости прокачки до 12 л/мин она увеличилась до 166 Вт (при входной мощности 15.5 Вт). Показано, что выходная мощность и КПД растут с увеличением скорости потока буферного газа [29].

Для более полного использования излучения лазеров накачки применялась конвертация части излучения с длиной волны  $\lambda = 5106 \text{ \AA}$  в излучение желтой линии с  $\lambda = 5782 \text{ \AA}$  в кювете с Pyromethene-597 [30]. Поскольку КПД преобразования достигал 85%, применение конвертера с последующей накачкой красителей, генерирующих в области  $\lambda = 6400 \text{ \AA}$ , оказалось более эффективным для получения мощного перестраиваемого излучения в этой области, чем непосредственное использование линии с  $\lambda = 5106 \text{ \AA}$ .

### 3.4. Перестраиваемые лазеры на красителях

Перестраиваемые лазеры на красителях, предназначенные для селективной фотоионизации неодима, были сконструированы по схеме с дифракционной решеткой в режиме угла скользкого падения. Первый переход возбуждался излучением лазера, работающего на одной продольной моде. Спектральная ширина линии генерации  $\Delta\nu_{\text{las}}$  была равна  $\sim 130 \text{ МГц}$ , высота неселективной фоновой подложки составляла  $\sim 0.2\%$  [31, 32]. На втором и третьем переходах использовались многомодовые лазеры со спектральной шириной линии 1–2 ГГц [33].

Поскольку генерация спектрального узкополосного излучения в лазерах на красителях развивается с задержкой относительно начала импульса накачки, как правило, 5–8 нс, накачка генераторов проводилась сдвоенными импульсами. Этот прием позволил выравнивать длительности импульса генерации и импульса накачки, что по-

лезно с точки зрения их последующего эффективного усиления [32].

Каждая из линеек перестраиваемых лазеров содержит несколько усилителей, для которых была выбрана схема продольной накачки [34]. Эта схема позволила нам получить высокие КПД преобразования излучения ЛПМ в перестраиваемое излучение и добиться достаточно равномерного распределения интенсивности света в плоскости лазерного пятна [33].

Применение достаточно мощных центробежных насосов в системе прокачки растворов лазерных красителей обеспечивает 2–5-кратную смену рабочего объема в кюветах лазеров за межимпульсный интервал времени. Тщательная фильтрация и выбор растворителя позволили увеличить стойкость растворов красителей к фотолу до  $\sim 45 \text{ ГДж/моль}$  [35].

Лазеры линейки третьего перехода накачиваются излучением как желтой ( $\lambda = 5782 \text{ \AA}$ ) линии ЛПМ (при этом используется краситель Cresyl Violet), так и зеленой ( $\lambda = 5106 \text{ \AA}$ ) линии (с красителем DCM) (рис.2). Полная эффективность преобразования излучения ЛПМ в перестраиваемое излучение составила  $\sim 45\%$ , а максимальная достигнутая мощность – 100 Вт [33].

## 4. Выбор схемы фотоионизации

Спектры атома неодима достаточно широко представлены в литературе [19, 20, 36]. Работа [36] содержит информацию о силах осцилляторов 116 линий поглощения Nd I. В [37] выполнено исследование эффективности 60 вариантов трехступенчатой неселективной фотоионизации неодима. Обнаружена исключительно эффективная схема фотоионизации Nd I излучением с двумя длинами волн –  $\lambda_1 = 5888 \text{ \AA}$  ( $\sim 2.1 \text{ эВ}$ ) и  $\lambda_3 = 5969 \text{ \AA}$  ( $\sim 2.07 \text{ эВ}$ ). Очевидно, что энергии этих двух квантов недостаточно для ионизации атома неодима и имеет место необычайно точное совпадение длины волны линии эффективного автоионизационного перехода с одной из указанных длин волн.

Наши измерения с использованием задержки лазерных импульсов показали, что в данной схеме происходит совпадение длин волн второго и третьего переходов. (В том случае, когда  $\lambda_3 = \lambda_1$ , задержка во времени импульса с  $\lambda_2$  относительно импульса с  $\lambda_1$  на величину, большую удвоенной ширины лазерного импульса, не должна приводить к ионизации. И наоборот, при  $\lambda_3 = \lambda_2$  задержка импульса с  $\lambda_2$  приведет лишь к небольшому ослаблению ионного сигнала за счет распада первого возбужденного уровня.)

Оценка изотопического сдвига для  $^{148}\text{Nd}$  и  $^{150}\text{Nd}$  на первом переходе рассматриваемой схемы  $\Delta\nu_{\text{is}}^{(1)}(148 - 150) = \nu_{148} - \nu_{150}$  дала значение  $\sim 100 \text{ МГц}$ , поэтому основная селективность фотоионизации (рис.2) была достигнута за счет изотопического сдвига на втором переходе  $\Delta\nu_{\text{is}}^{(2)}(148 - 150) = 500 \text{ МГц}$ . К сожалению, этих величин недостаточно для получения высоких концентраций  $^{150}\text{Nd}$  в камере сепаратора при потоках пара с высокой плотностью и большой расходимостью. Что касается других схем фотоионизации [37], которые основаны на первом переходе с  $\lambda_1 = 5966 \text{ \AA}$  и относительно большим изотопическим сдвигом  $\Delta\nu_{\text{is}}^{(2)}(148 - 150)$ , то они оказались не очень эффективными.

Нами был предпринят поиск схемы ионизации для работы в диапазоне генерации красителей – оксазина, фе-

Табл.1.

| Номер схемы | $\lambda_1$ (Å) | $\lambda_2$ (Å) | $\lambda_3$ (Å) |
|-------------|-----------------|-----------------|-----------------|
| I           | 5966            | 6470            | 6343            |
| II          | 5966            | 5794            | 6405            |
| III         | 6288            | 5900            | 6491            |
| IV          | 6455            | 6345            | 5855            |

налимина и родамина В. Исследовано около 2000 схем фотоионизации, основанных на первых переходах с  $\lambda_1 = 5966, 6288$  и  $6455 \text{ \AA}$ . Четыре из них (I–IV) выделены как наиболее подходящие (табл.1). Эффективность ионизации новых схем сравнивалась с эффективностью для двухцветной схемы [37]. На рис.4 приведен пример экспериментальных зависимостей фотоионного тока  $J$  от средней плотности мощности лазерного излучения, которые использовались при отборе наиболее эффективных последовательностей переходов с  $\lambda_1, \lambda_2$  и  $\lambda_3$ . При расчете реально действующей на атомы интенсивности света  $\bar{I}_m$  (в  $\text{Вт/см}^2$ ) с почти гауссовым распределением ее во времени использовалось соотношение

$$\bar{I}_m = \frac{\mathcal{P}}{1.5\tau_p f}, \quad (2)$$

где  $\mathcal{P}$  – средняя плотность мощности лазерного излучения (в  $\text{Вт/см}^2$ );  $f = 10 \text{ кГц}$ ; длительность импульса  $\tau_p = 22.5 \text{ нс}$ .

Как следует из сравнения зависимостей сигнала фотоионного тока от интенсивности лазерного излучения (рис.4), выбранная нами схема ( $\lambda_1 = 5966.04 \text{ \AA}$ , энергия первого возбужденного уровня  $16757.035 \text{ см}^{-1}$ ,  $\lambda_2 = 5794.17 \text{ \AA}$ , энергия второго возбужденного уровня  $34011 \text{ см}^{-1}$  и  $\lambda_3 = 6404.47 \text{ \AA}$ ) проигрывает двухцветной. Например, для получения сигнала фотоионного тока, составляющего 0.5 от максимально возможного, в случае схемы II (табл.1) необходима плотность мощности в 3.5 раза большая, чем для двухцветной схемы. Тем не менее изотопический сдвиг на первом переходе этой схемы  $\Delta\nu_{is}^{(1)}(148 - 150) \approx 1.1 \text{ ГГц}$  позволяет получить высокую селективность фотоионизации при наработках  $^{150}\text{Nd}$  в широко расходящихся плотных потоках атомного пара.

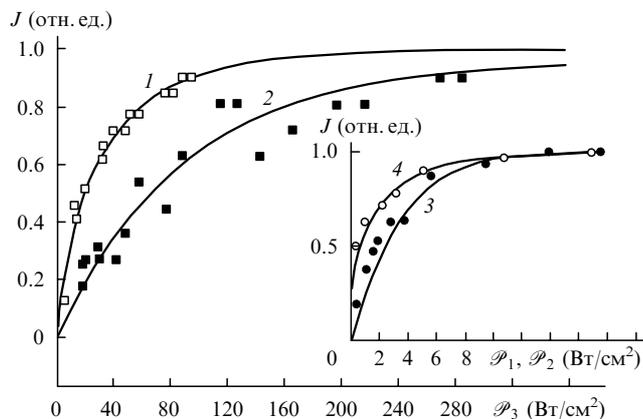


Рис.4. Зависимости фотоионного тока  $J$  от средней плотности мощности ионизирующего лазера  $\mathcal{P}_3$  для двухцветной схемы с  $\lambda_1 = 5889 \text{ \AA}$ ,  $\lambda_2 = \lambda_3 = 5971 \text{ \AA}$  [39] (1) и трехцветной схемы с  $\lambda_1 = 5966.04 \text{ \AA}$ ,  $\lambda_2 = 5794.17 \text{ \AA}$ ,  $\lambda_3 = 6404.47 \text{ \AA}$  при  $\mathcal{P}_1 = 3.8 \text{ Вт/см}^2$  и  $\mathcal{P}_2 = 6.0 \text{ Вт/см}^2$  (2). На вставке – зависимости для трехцветной схемы тока  $J$  от средней плотности мощности первого перехода  $\mathcal{P}_1$  при  $\mathcal{P}_2 = 64 \text{ Вт/см}^2$  и  $\mathcal{P}_3 = 115 \text{ Вт/см}^2$  (3), а также от средней плотности мощности второго перехода при  $\mathcal{P}_1 = 23 \text{ Вт/см}^2$  и  $\mathcal{P}_3 = 115 \text{ Вт/см}^2$  (4).

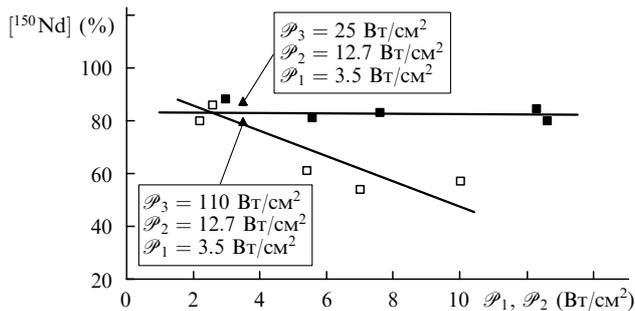


Рис.5. Зависимости для схемы II ( $\lambda_1 = 5966 \text{ \AA}$ ,  $\lambda_2 = 5794 \text{ \AA}$ ,  $\lambda_3 = 6404 \text{ \AA}$ ) концентрации фотоионов  $^{150}\text{Nd}$ , полученные в масс-спектрометре контрольной камеры, от средней плотности мощности первого перехода  $\mathcal{P}_1$  при  $\mathcal{P}_2 = 3 - 5.7 \text{ Вт/см}^2$ ,  $\mathcal{P}_3 = 92 - 108 \text{ Вт/см}^2$  ( $\square$ ) и от средней плотности мощности второго перехода  $\mathcal{P}_2$  при  $\mathcal{P}_1 = 3.5 \text{ Вт/см}^2$ ,  $\mathcal{P}_3 = 92 - 108 \text{ Вт/см}^2$  ( $\blacksquare$ ). Изменение селективности при увеличении средней плотности мощности третьего перехода  $\mathcal{P}_3$  показано двумя точками ( $\blacktriangle$ ).

На рис.5 представлены измеренные зависимости концентрации изотопа  $^{150}\text{Nd}$ , полученные в масс-спектрометре контрольной камеры, от средней плотности мощности лазеров первого и второго переходов. Эксперименты показывают, что увеличение интенсивности лазерного излучения на первом переходе приводит к снижению селективности фотоионизации. Подробнее это явление рассмотрено в работе [38], где оно объясняется нерезонансным возбуждением атомов вследствие полевого уширения.

В масс-спектрометре контрольной камеры угол раскрытия атомного пучка  $\gamma \approx 5.5^\circ$ . При его увеличении возрастает доплеровская ширина контура поглощения, что является одной из причин потери селективности при выделении  $^{150}\text{Nd}$ . Для иллюстрации соотношений между изотопическими сдвигами, доплеровским уширением и шириной лазерного контура на рис.6 приведены рассчитанные контуры линий поглощения четных изотопов при угле раскрытия  $\gamma \approx 60^\circ$  для линии с  $\lambda = 5966 \text{ \AA}$  (без учета полевого уширения) и контур интенсивности света лазера первого перехода. Контур лазерной линии, приведенный на рис.6, измерен конфокальным сканируемым

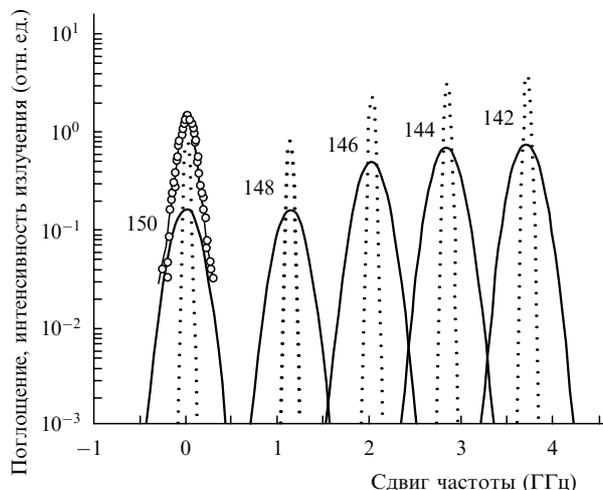


Рис.6. Рассчитанные контуры линий поглощения четных изотопов для перехода с  $\lambda = 5966 \text{ \AA}$  при угле раскрытия  $\gamma = 60^\circ$  (сплошные кривые) и  $5.5^\circ$  (пунктир), а также измеренная зависимость интенсивности излучения лазера первого перехода от частоты (точки). Цифры у кривых – номера изотопов.

интерферометром Groppe Model 240 Spectrum Analyser (интервал свободной дисперсии 1.5 ГГц, приборная резкость 100) и аппроксимировался гауссовым контуром с шириной на полувысоте  $\Delta\nu_D = 130$  МГц.

При построении контуров линий поглощения четных изотопов использовалась доплеровская форма линии, описываемая выражением

$$\mathcal{D}(\Delta\nu) = \mathcal{D}(v - v_0) = \frac{2(\ln 2)^{1/2}}{\sqrt{\pi} \Delta\nu_D} \times \exp \left[ -4 \ln 2 \left( \frac{v - v_0}{\Delta\nu_D} \right)^2 \right], \quad (3)$$

где  $v_0$  – центральная частота контура поглощения. Расчет зависимости  $\Delta\nu_D$  от угла раскрытия потока атомов  $\gamma$  проводился по формуле, обычно используемой для молекулярных пучков [39, 40]:

$$\Delta\nu_D(\gamma) = \Delta\nu_{D0} \sin \frac{\gamma}{2}, \quad (4)$$

где  $\Delta\nu_D = v_0 2(\ln 2)^{1/2} v_p / c$  – эффективная ширина контура (в Гц) для хаотического газа. Для исследования селективности фотоионизации при различных углах раскрытия атомного пучка  $\gamma$  (вдоль лазерного луча) над испарителем устанавливались коллимирующие решетки, уменьшающие  $\gamma$  до  $60^\circ$ ,  $45^\circ$  и  $30^\circ$ . Такие эксперименты позволяют определить селективность при совместном действии полевого и доплеровского уширения. Эксперименты показывают, что селективность фотоионизации возрастает с уменьшением угла раскрытия атомного потока [41]. Более подробно применение коллимации для сужения доплеровского контура поглощения теоретически рассмотрено в работе [42].

## 5. Производительность и селективность АВЛИС-процесса

### 5.1. Внешние и внутренние параметры

Производительность  $N_t^+$  (в ат./с) АВЛИС-процесса по целевому изотопу в идеализированном варианте определяется произведением числа облучаемых за один импульс атомов целевого изотопа  $N_t = \bar{n} C_{ft} C_{lev} V_{ov}$  (в ат./имп.) на вероятность фотоионизации этих атомов  $\eta_t$  и частоту повторения лазерных импульсов  $f$  (в Гц):

$$N_t^+ = N_t \eta_t f = \bar{n} L S_{rad} C_{ft} C_{lev} \eta_t f, \quad (5)$$

где  $\bar{n}$  – средняя плотность атомов в рабочем объеме установки  $V_{ov} = L S_{rad}$ ;  $S_{rad}$  – полная площадь области пара, освещаемой лазерными лучами;  $C_{ft}$  – исходная концентрация целевого изотопа в облучаемой смеси (здесь и далее величины, относящиеся к целевому изотопу, имеют индекс  $t$ );  $C_{lev}$  – населенность рабочего уровня при температуре испарения;  $L$  – длина рабочего объема.

Формула (5) справедлива при низких частоте повторения лазерных импульсов  $f$  и плотности атомов  $\bar{n}$ , когда полностью отсутствует запыление коллектора рассеянными атомами. Определим параметр  $\beta$  как долю от входящего в разделительную ячейку потока атомов  $F$ , которая из-за столкновений атомов попадает на коллектор фотоионов. Коэффициент  $\beta$  сложным образом зависит

от конструкции разделительной ячейки, угла раскрытия потока атомов  $\gamma$  и числа соударений, испытываемых атомами при пролете через ту часть рабочего объема, из которой возможны прямые траектории к коллектору [43].

Отметим, что слишком высокая рабочая плотность нейтральных атомов  $\bar{n}$  может привести к значительным потерям ионов целевого изотопа при резонансной перезарядке. Оценим, например, для ионов неодима вероятность избежать резонансной перезарядки  $\chi_{ctr}$  на собственных нейтральных атомах при плотности  $\bar{n} \approx 10^{12}$  см $^{-3}$ . Зависимость сечения резонансной перезарядки ионов неодима  $\sigma_{ctr}$  от их скорости  $v_{ion}$  можно представить согласно [14, 44] полуэмпирическим выражением

$$\sigma_{ctr}^{1/2} = 2.14 a_0 \ln \frac{c}{v_{ion}}, \quad (6)$$

где  $a_0 = 0.53 \times 10^{-8}$  см. При ширине потока пара  $b = 4$  см для иона, имеющего при температуре  $1430^\circ\text{C}$  тепловую скорость  $\bar{v}_{ion} = 500$  м/с, вероятность испытать резонансную перезарядку на пути длиной  $l = (2/3)b$

$$\eta_{ctr} = \bar{n} \sigma_{ctr} l = 10^{12} \times 2.7 \times 227 \times 10^{-16} = 6.1 \times 10^{-2}. \quad (7)$$

А доля атомов целевого изотопа  $\chi_{ctr}$ , избежавших резонансной перезарядки, оказывается равной  $\sim 0.94$ . Отметим, что для этой оценки была взята тепловая скорость иона до его ускорения в электрическом поле экстрактора, т. е. получено минимальное значение  $\chi_{ctr}$ .

Запишем теперь более полные выражения для потока продукта  $P$  и концентрации целевого изотопа в нем  $C_{pt}$ . Поток продукта (в г/ч)

$$P = \left[ F C_{lev} \left( C_{ft} \eta_t^s + \sum_i C_{fi} \eta_i^s \right) \chi_{rad} \chi_{ex} + \beta F \right] \chi_{att} = (I + D) \chi_{att}, \quad (8)$$

где  $F$  (в г/ч) – поток питания; коэффициент  $\chi_{att}$  введен для учета возможного отскока фотоионов при попадании их на поверхность коллектора, а также ионного распыления наработанного материала и характеризует эффективность осаждения продукта;  $\chi_{ex}$  – доля фотоионов, экстрагируемая из потока электрическим полем коллектора;  $I$  – поток ионов, обогащенный целевым изотопом;  $D$  – поток нейтрального компонента на коллектор с исходной изотопной концентрацией; суммирование по  $i$  здесь и далее означает суммирование по всем нецелевым изотопам (имеются в виду шесть изотопов неодима с массовыми числами 148, 146, 145, 144, 143, 142). Выделим в потоке  $I$  часть  $I_t$ , соответствующую только целевому изотопу:

$$I_t = F C_{lev} C_{ft} \chi_{rad} \chi_{ex} \eta_t^s, \quad (9)$$

тогда концентрация целевого изотопа в продукте на коллекторе

$$C_{pt} = \frac{F C_{lev} C_{ft} \eta_t^s \chi_{rad} \chi_{ex} \chi_{ctr} + \beta C_{ft} F}{P / \chi_{att}} = \frac{\chi_{ctr} I_t + C_{ft} D}{I + D}. \quad (10)$$

В выражениях (8)–(10) вероятности ионизации для сепаратора имеют верхний индекс  $s$ . В дальнейшем будем использовать вероятности ионизации для сепаратора ( $\eta^s$ ) и в контрольной камере ( $\eta^m$ ), которые различаются только тем, что в контрольной камере ширина допле-

ровских контуров изотопов составляет ~70 МГц, а в сепараторе она равна 300 МГц и более.

В разделительной технике для описания эффективности процесса разделения обычно используются следующие параметры: коэффициент разделения

$$\alpha = \frac{C_p/(1 - C_p)}{C_w/(1 - C_w)}, \tag{11}$$

селективность

$$S^* = \frac{C_p/(1 - C_p)}{C_f/(1 - C_f)}, \tag{12}$$

коэффициент извлечения целевого изотопа из потока питания

$$\psi = \frac{PC_p}{FC_p}, \tag{13}$$

где  $C_w$  – концентрация целевого изотопа в отвале. Параметры  $\chi_{ctr}$ ,  $\chi_{rad}$  и  $\chi_{ex}$  могут быть измерены или оценены с достаточной точностью расчетным путем. Однако крайне важные для оптимизации процесса обогащения три внутренних параметра,  $\eta_i^s$ ,  $\overline{\eta_{nt}^s} = \sum_i C_{fi} \eta_i^s / \sum_i C_{fi}$  и  $\beta$ , напрямую не поддаются оценке из измерений шести внешних параметров: потоков питания  $F$ , продукта  $P$  и отвала  $W$  и концентраций целевого изотопа в них –  $C_f$ ,  $C_p$  и  $C_w$ .

**5.2. Определение концентрации фотоионов целевого изотопа в сепараторе и других внутренних параметров**

Введем параметры  $C_{ph}^m$  и  $C_{ph}^s$ , означающие первичную концентрацию фотоионов, образуемых лазерным излучением в контрольной камере и сепараторе:

$$C_{ph}^m = \frac{C_{ft} \eta_t^m}{C_{ft} \eta_t^m + \sum_i C_{fi} \eta_i^m}, \tag{14}$$

$$C_{ph}^s = \frac{C_{ft} \eta_t^s}{C_{ft} \eta_t^s + \sum_i C_{fi} \eta_i^s}.$$

Обычно условия эксперимента выбираются так, что  $\chi_{ex} = 1$ , поэтому, пользуясь определениями (9) и (14), для первичного потока фотоионов целевого изотопа запишем выражение

$$I_t = FC_{lev} C_{ft} \chi_{rad} \eta_t^s = C_{ph}^s I$$

или для любого изотопа –

$$I_i = C_{phi}^s I. \tag{15}$$

Теперь выражению для концентрации продукта (10) можно придать следующий вид:

$$C_{pt} = \frac{\chi_{ctr} C_{ph}^s I + C_{ft} D}{I + D},$$

откуда

$$\chi_{ctr} C_{ph}^s = \frac{C_{pt}(I/D + 1) - C_{ft}}{I/D}. \tag{16}$$

Мы сохранили обозначение  $C_{pt}$  для концентрации целевого изотопа, однако формула (16) имеет более общий характер и верна для любого изотопа  $i$ , поскольку для него концентрации  $C_{pi}$  и  $C_{fi}$  в потоках продукта и питания могут быть измерены. Таким образом, значения  $C_{phi}^s$  определяются измеряемыми величинами  $C_{pi}$  и  $C_{fi}$  и единым для всех изотопов, общим для данного эксперимента отношением  $I/D$ .

При настройке лазеров на изотоп  $^{150}\text{Nd}$  отношение  $C_{phi}^m/C_{fi}$  быстро уменьшается с уменьшением массы изотопа (т. е. с увеличением изотопического смещения  $\Delta v_{isi}^{(1)} = v_{150} - v_i$ ). Это хорошо видно из приведенных в табл.2 значений эффективности ионизации  $\eta_i^m \cdot \text{const} = C_{phi}^m/C_{fi}$  для четных изотопов. Введем отношение  $\alpha_i = C_{phi}^s/C_{phi}^m$ , которое для нецелевых четных изотопов (кроме случая  $\Delta v_D^m = \Delta v_D^s$ ) больше единицы. При этом для масс изотопов 146–142 функция  $\alpha_i = f(\Delta v_{isi}^{(1)})$  изменяется слабо, следовательно

$$\alpha_{146} \approx \alpha_{144} \approx \alpha_{142}, \quad \frac{\alpha_{i+2}}{\alpha_i} \approx 1. \tag{17}$$

Запишем для изотопов  $^{142}\text{Nd}$  и  $^{144}\text{Nd}$  выражение для  $\alpha_{i+2}/\alpha_i$ , подставив в него вместо  $C_{phi}^s$  их значения, найденные из (16):

$$\frac{\alpha_{142}}{\alpha_{144}} = \frac{C_{ph142}^s}{C_{ph142}^m} \frac{C_{ph144}^m}{C_{ph144}^s} = \frac{C_{ph144}^m}{C_{ph142}^m} \frac{C_{p142}(I/D + 1) - C_{f142}}{C_{p144}(I/D + 1) - C_{f144}} \approx 1. \tag{18}$$

Отношение  $I/D$  можно определить, приравняв правую часть (18) единице. Например, для образца № 76 (табл.2) получаем

$$\frac{I}{D} = \frac{C_{ph144}^m C_{f142} - C_{ph142}^m C_{f144}}{C_{ph144}^m C_{p142} - C_{ph142}^m C_{p144}} - 1 = 4.801 - 1 = 3.801. \tag{19}$$

Табл.2.

| Изотоп            | $C_{fi}$ (%) | $C_{phi}^m$ (%) | $C_{phi}^m/C_{fi}$ | Образец № 75 |                 | Образец № 76 |                 | Образец № 77 |                 | Образец № 78 |                 | Образец № 79 |                 | $\bar{C}_{phi}$ (%) |
|-------------------|--------------|-----------------|--------------------|--------------|-----------------|--------------|-----------------|--------------|-----------------|--------------|-----------------|--------------|-----------------|---------------------|
|                   |              |                 |                    | эксперим.    | расчет          |                     |
|                   |              |                 |                    | $C_{pi}$ (%) | $C_{phi}^s$ (%) |                     |
| $^{150}\text{Nd}$ | 5.6          | 91.58           | 16.35              | 34.1 ± 0.2   | 70 ± 2          | 56.3 ± 0.2   | 71 ± 2          | 35.3 ± 0.2   | 73 ± 2          | 16.5 ± 0.2   | 73 ± 4          | 9.6 ± 0.2    | 71 ± 9          | 71.8                |
| $^{148}\text{Nd}$ | 5.7          | 4.59            | 0.805              | 11.1 ± 0.2   | 18 ± 1          | 16.3 ± 0.2   | 19 ± 1          | 10.9 ± 0.2   | 18 ± 1          | 7.7 ± 0.2    | 18 ± 1          | 6.4 ± 0.2    | 17 ± 2          | 18.0                |
| $^{146}\text{Nd}$ | 17.2         | 2.61            | 0.152              | 12.9 ± 0.2   | 7.4 ± 0.2       | 9.3 ± 0.2    | 7.1 ± 0.2       | 12.5 ± 0.2   | 7.0 ± 0.2       | 15.4 ± 0.2   | 6.0 ± 0.5       | 16.6 ± 0.2   | 7.3 ± 2         | 6.8                 |
| $^{145}\text{Nd}$ | 8.3          | 0.27            | 0.0325             | 5.4 ± 0.2    | 1.7 ± 0.2       | 3.0 ± 0.2    | 1.5 ± 0.2       | 5.2 ± 0.2    | 1.3 ± 0.2       | 7.2 ± 0.2    | 1.5 ± 0.3       | 7.9 ± 0.2    | 1.7 ± 1         | 1.5                 |
| $^{144}\text{Nd}$ | 23.8         | 0.86            | 0.0344             | 14.2 ± 0.2   | 2.4 ± 0.5       | 6.4 ± 0.2    | 1.3 ± 0.5       | 13.9 ± 0.2   | 1.4 ± 0.5       | 20.1 ± 0.2   | 1.0 ± 1         | 22.5 ± 0.2   | 2 ± 2           | 1.4                 |
| $^{143}\text{Nd}$ | 12.2         | 0.03            | 0.00246            | 7.0 ± 0.2    | 0.4 ± 0.3       | 2.9 ± 0.2    | 0.3 ± 0.1       | 7.0 ± 0.2    | 0.4 ± 0.3       | 10.3 ± 0.2   | 0.5 ± 0.5       | 11.5 ± 0.2   | 1 ± 1           | 0.4                 |
| $^{142}\text{Nd}$ | 27.2         | 0.08            | 0.00294            | 15.3 ± 0.2   | 0.1 ± 0.1       | 5.8 ± 0.2    | 0.1 ± 0.1       | 15.2 ± 0.2   | 0.1 ± 0.1       | 22.8 ± 0.2   | 0.1 ± 0.1       | 25.6 ± 0.2   | 0.1 ± 0.1       | 0.1                 |

Примечания:  $\bar{C}_{phi}$  – усредненное по всем образцам расчетное значение  $C_{phi}^s$ ; в расчетах использовалось  $I/D = 0.78 \pm 0.03$  (образец № 75),  $3.7 \pm 0.2$  (№ 76),  $0.79 \pm 0.03$  (№ 77),  $0.19 \pm 0.01$  (№ 78) и  $0.065 \pm 0.005$  (№ 79).

А среднее по нескольким точкам значение  $I/D$  оказалось равным 3.7. Далее согласно (16) для  $C_{\text{ph}150}^s$  при  $C_{\text{p}150} = 0.563$  имеем

$$\chi_{\text{ctr}} C_{\text{ph}150}^s = \frac{C_{\text{p}150}(3.7 + 1) - C_{\text{p}150}}{3.7} = 0.70. \quad (20)$$

В табл.2 значения  $C_{\text{ph}i}^s$  получены при усреднении по нескольким измерениям.

Для проверки работоспособности предложенного метода был проведен специальный эксперимент, в котором пробы на масс-спектрометрический анализ брались из мест с существенно разным запылением изготвленного соответствующим образом коллектора. Результаты экспериментов и расчетов первичной концентрации фотоионов в сепараторе даны в табл.2. Из нее следует, что, несмотря на специально созданное усложняющее обстоятельство (потоки запыления различались в 57 раз), средние значения  $C_{\text{ph}i}^s$  для четных изотопов определены с достаточной для дальнейших оценок погрешностью, равной 5% – 10%.

Проведем, для примера, расчет внутренних параметров при  $C_{\text{pt}} = 0.563$ ,  $P = 6.1$  мг/ч,  $F = 1410$  мг/ч,  $\chi_{\text{ctr}} = 0.94$ ,  $\chi_{\text{rad}} = 0.9$ ,  $\chi_{\text{att}} = 0.6$ ,  $\chi_{\text{ctr}} C_{\text{ph}t}^s = 0.7$ ,  $I/D = 3.7$ . Подставляя  $I = 3.7D$  в (10), получаем выражение

$$C_{\text{pt}} = 0.563 = \frac{3.7D \chi_{\text{ctr}} C_{\text{ph}t}^s + 0.056D}{P/\chi_{\text{att}}} = \frac{2.65D}{10.17},$$

откуда  $D = 2.16$  мг/ч. Так как  $P/\chi_{\text{att}} = I + D$ , то  $I = 8.01$  мг/ч. В свою очередь поток целевого изотопа на коллектор

$$\frac{PC_{\text{pt}}}{\chi_{\text{att}}} = \chi_{\text{ctr}} I_t + C_{\text{ft}} D = 5.72 \text{ мг/ч},$$

тогда  $I_t = 5.96$  мг/ч. Далее, суммарный поток фотоионов нецелевых изотопов

$$I_{\text{nt}} = I - I_t = 2.05 \text{ мг/ч}.$$

Теперь определение внутренних параметров  $\eta_t^s$ ,  $\overline{\eta_{\text{nt}}^s}$  и  $\beta$  не представляет труда. Поскольку  $I_t = FC_{\text{lev}} C_{\text{ft}} \chi_{\text{rad}} \eta_t^s$ , то

$$\eta_t^s = \frac{5.96}{1410 \times 0.0293} = 0.145.$$

Из равенства  $I_{\text{nt}} = FC_{\text{lev}} C_{\text{fnt}} \chi_{\text{rad}} \overline{\eta_{\text{nt}}^s}$  находим, что

$$\overline{\eta_{\text{nt}}^s} = \frac{2.05}{1410 \times 0.493} = 0.00295.$$

Коэффициент запыления

$$\beta = \frac{D}{F} = \frac{2.16}{1410} = 0.00153.$$

Таким образом, при разделении изотопов элементов, содержащих несколько четных изотопов, спектры которых отстоят друг от друга на расстояние, большее спектральной ширины контура поглощения применяемого атомного пучка, удается определить внутренние параметры, необходимые для расчета производственной установки.

### 5.3. Прямые измерения вероятности фотоионизации

Одним из важнейших внутренних параметров, определяющих производительность АВЛИС-процесса является вероятность фотоионизации целевого изотопа  $\eta_i$ . В связи с этим были предприняты прямые измерения вероятности фотоионизации. Схема эксперимента представлена на рис.7. В вакуумной камере диаметром 50 см, непосредственно над испарителем, формирующим слабо расходящийся пучок (угол раскрытия  $2^\circ$ ), организован рабочий объем, аналогичный используемому в камере сепаратора. Рабочий объем оснащен коллектором фотоионов, находящимся под напряжением примерно  $-50$  В и дефлектором, имеющим потенциал земли. Коллектор служит для вытягивания фотоионов из потока атомов. Многопроходная оптическая система обеспечивает многократное прохождение лазерного луча диаметром 1 см, при этом протяженность облучаемой зоны вдоль потока атомов составляет 9 см, что соответствует вероятности облучения  $\sim 0.95$  (рис.3). Атомы неодима, которые не подверглись фотоионизации при взаимодействии с лазерным излучением, продолжают прямолинейное движение и попадают в источник ионов квадрульного масс-спектрометра. Расстояние между областью фотоионизации и масс-спектрометром составляет 25 см, а среднее время пролета – 0.6 мс. В масс-спектрометре имеются две возможности регистрации атомов: электронным ударом и с помощью фотоионизации лазерным излучением, ответвленным от основного пучка.

Методика эксперимента заключается в том, что фильтр масс-спектрометра настраивается на целевой изотоп (для увеличения чувствительности эксперимент проводился на изотопе  $^{142}\text{Nd}$ , имеющем наибольшую природную концентрацию 27%). Длины волн лазеров настраиваются на максимум фотоионизации целевого изотопа. При облучении атомного пучка в рабочем объеме лазерными лучами происходит частичная фотоионизация целевого изотопа, а в масс-спектромет-

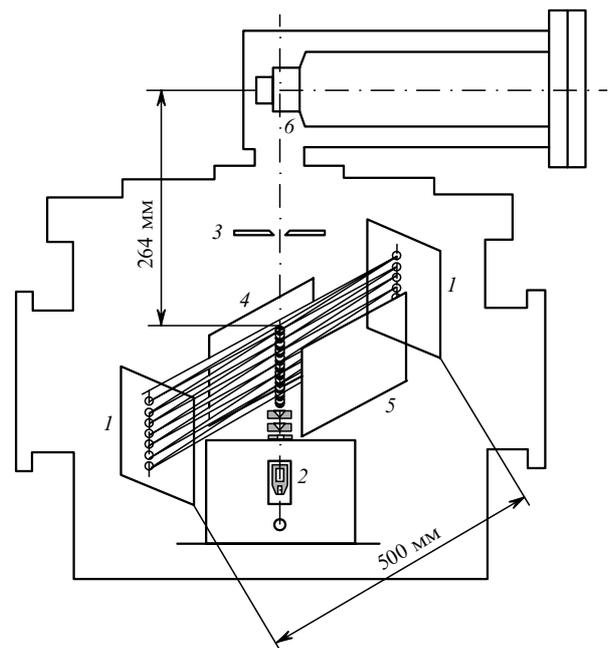


Рис.7. Схема эксперимента по измерению вероятности фотоионизации:

1 – многопроходная система; 2 – испаритель; 3 – диафрагма; 4 – дефлектор; 5 – коллектор; 6 – масс-спектрометр.

ре при тестировании облученного потока наблюдается уменьшение сигнала, пропорциональное вероятности фотоионизации.

При регистрации атомов в масс-спектрометре электронным ударом отношение разности сигналов при закрытом и открытом лазерном излучении в рабочем объеме к сигналу при закрытом лазерном излучении дает убыль целевого изотопа за счет фотоионизации. Поскольку возбуждение атомов проводилось из основного состояния, вероятность фотоионизации определяется делением убыли на равновесную населенность основного состояния, которая при температуре испарения составляет 0.58.

При регистрации атомов в масс-спектрометре с помощью лазерной фотоионизации, регистрируются атомы целевого изотопа, находящиеся только в основном состоянии, поэтому уменьшение сигнала при открывании лазерного излучения в рабочем объеме пропорционально степени опустошения основного состояния.

Эксперименты проводились с использованием схемы фотоионизации излучением с  $\lambda_1 = 5966.04 \text{ \AA}$ ,  $\lambda_2 = 5794.17 \text{ \AA}$ ,  $\lambda_3 = 6404.47 \text{ \AA}$ . При средних плотностях мощности  $\mathcal{P}_1 \sim 0.5 \text{ Вт/см}^2$ ,  $\mathcal{P}_2 \sim 0.5 \text{ Вт/см}^2$ ,  $\mathcal{P}_3 \sim 39 \text{ Вт/см}^2$  получена вероятность фотоионизации  $0.70 \pm 0.06$  и степень опустошения основного состояния  $\sim 0.9$ . Следует отметить, что в рабочем объеме происходило пространственное перекрытие лучей соседних проходов. При небольшом ( $\sim 50 \text{ см}$ ) расстоянии между зеркалами многопроходной системы это приводит к наложению импульсов, и на атомы воздействует лазерное излучение с удвоенной в среднем интенсивностью.

Оценим вероятность фотоионизации, используя найденное значение степени опустошения основного состояния. Главным каналом потерь возбужденных атомов является распад второго возбужденного состояния с постоянной времени  $\tau_2 = 40 \text{ нс}$  [45], при этом большинство атомов распадаются в метастабильные состояния, не участвующие в схеме фотоионизации. Число атомов, покидающих второе возбужденное состояние в единицу времени за счет распада и фотоионизации, пропорционально  $1/\tau_2 + W_{23}$ , где

$$W_{23} = \frac{\bar{I}_m \sigma_3}{h\nu_3} \quad (21)$$

– частота переходов (в Гц) в автоионизационное состояние;  $\bar{I}_m$  (в Вт/см<sup>2</sup>) и  $h\nu_3$  (в Дж) – интенсивность и энергия кванта ионизирующего излучения;  $\sigma_3$  (в см<sup>2</sup>) – сечение ионизирующего перехода.

При сечении фотоионизации  $\sigma_3 = 2 \times 10^{-16} \text{ см}^2$ , интенсивности  $\bar{I}_m = 2.4 \times 10^5 \text{ Вт/см}^2$ , соответствующей средней плотности мощности  $\mathcal{P}_3 \sim 80 \text{ Вт/см}^2$ , частота переходов в автоионизационное состояние  $W_{23} = 150 \text{ МГц}$  и значительно превышает обратную длительность лазерного импульса  $1/25 \text{ нс} = 40 \text{ МГц}$ . В этом случае долю атомов, уходящих из второго возбужденного состояния в автоионизационное можно оценить как  $W_{23}/(1/\tau_2 + W_{23}) = 0.86$ . Для оценки вероятности фотоионизации полученную величину нужно умножить на степень опустошения основного состояния. В результате вероятность фотоионизации целевого изотопа  $\eta_i$  оказывается равной  $0.86 \times 0.9 = 0.77$ , что приблизительно соответствует измеренной вероятности.

Таким образом, в рассматриваемом эксперименте в результате прохождения атомов через рабочий объем вероятность фотоионизации целевого изотопа составляет около 0.7, вероятность того, что атом остается в основном состоянии, – приблизительно 0.1 и вероятность попадания в метастабильное состояние при распаде второго возбужденного уровня равна 0.15–0.2.

## 6. Результаты экспериментов по наработке неодима, обогащенного изотопом <sup>150</sup>Nd, и их обсуждение

Длительность таких экспериментов обычно составляла 1 ч. Для поиска максимальной производительности при достаточно высоком обогащении изменялись температура испарения и диаметры лазерных лучей, менялись коллимирующие решетки, конфигурация коллектора и т. д. Результаты наиболее успешных экспериментов приведены в табл.3. Развита в предыдущих разделах методика позволила оценить внутренние параметры процесса разделения для каждого проведенного эксперимента.

Неполное осаждение фотоионов на коллектор, а также ионное распыление наработанного продукта приводят к тому, что реально полученное количество продукта оказывается меньше рассчитанного по фотоионному току. Оценка эффективности осаждения продукта на коллектор  $\chi_{\text{att}}$  проводилась по уравнениям материального баланса с использованием содержания целевого изотопа <sup>150</sup>Nd на противоположном коллектору электроде – дефлекторе.

Для всех экспериментов в табл.3 использовалось значение  $\chi_{\text{att}} = 0.6$ , хотя при изменении структуры и положения коллектора оно могло несколько варьироваться. Не учтены в табл.3 и небольшие потери продукта при смы-

Табл.3.

| Номер эксперимента | Условия эксперимента |          |          |     | Внешние параметры |                     |            | Расчетные параметры |   | Потоки в сепараторе |            |                              | Внутренние параметры |                            |                      |
|--------------------|----------------------|----------|----------|-----|-------------------|---------------------|------------|---------------------|---|---------------------|------------|------------------------------|----------------------|----------------------------|----------------------|
|                    | Часть коллектора     | $H$ (см) | $d$ (мм) | $Z$ | $P$ (мг/ч)        | $C_{\text{pt}}$ (%) | $F$ (мг/ч) | $I/D$               | $\chi_{\text{ctr}} C_{\text{ph}}^{150}$ (%) | $D$ (мг/ч)          | $I$ (мг/ч) | $P/\chi_{\text{att}}$ (мг/ч) | $\eta_i^s$           | $\bar{\eta}_{\text{nt}}^s$ | $\beta = D/F$        |
| 1                  | Нижняя               | 30       | 30       | 18  | 11.1              | 42.2                |            | 1.39                | 68.5  | 7.8                 | 10.8       | 18.5                         |                      |                            | $1.9 \times 10^{-3}$ |
|                    | Верхняя              | 30       | 30       | 18  | 9.8               | 53.7                |            | 2.15                | 76.1  | 5.2                 | 11.1       | 16.3                         |                      |                            | $1.3 \times 10^{-3}$ |
|                    | Весь коллектор       |          |          |     | 20.9              | 47.6                | 4002       |                     |   | 12.9                | 21.9       | 34.8                         | 0.14                 | $3.1 \times 10^{-3}$       | $3.2 \times 10^{-3}$ |
| 2                  | Нижняя               | 30       | 30       | 18  | 10.8              | 65.8                |            | 4.21                | 80.1  | 3.5                 | 14.6       | 18.0                         |                      |                            | $9.8 \times 10^{-4}$ |
|                    | Верхняя              | 30       | 30       | 18  | 5.4               | 53.4                |            | 2.37                | 73.6  | 2.7                 | 6.3        | 9.0                          |                      |                            | $7.6 \times 10^{-4}$ |
|                    | Весь коллектор       |          |          |     | 16.2              | 61.7                | 3534       |                     |   | 6.1                 | 20.9       | 27.0                         | 0.16                 | $2.6 \times 10^{-3}$       | $1.7 \times 10^{-3}$ |
| 3                  | Весь коллектор       | 15       | 20       | 25  | 18.1              | 58.3                | 4284       | 2.17                | 82.6  | 9.5                 | 20.7       | 30.2                         | 0.14                 | $1.7 \times 10^{-3}$       | $2.2 \times 10^{-3}$ |
| 4                  | Весь коллектор       | 15       | 20       | 25  | 16.5              | 64.4                | 3734       | 3.33                | 82.0  | 6.4                 | 21.2       | 27.5                         | 0.16                 | $2.1 \times 10^{-3}$       | $1.7 \times 10^{-3}$ |
| 5                  | Весь коллектор       | 30       | 20       | 25  | 42.7              | 60.1                | 8018       | 2.52                | 82.0  | 20.3                | 51.0       | 57.7                         | 0.18                 | $2.3 \times 10^{-3}$       | $2.5 \times 10^{-3}$ |

Примечание:  $H$  – эффективный размер коллектора;  $d$  – диаметр лазерного луча;  $Z$  – число проходов.

вах с коллекторов, которые тщательно очищались перед каждым экспериментом для устранения изотопной памяти.

Плотности лазерной мощности в данных экспериментах изменялись в следующих пределах:  $\mathcal{P}_1 = 1.5 - 2.5 \text{ Вт/см}^2$ ,  $\mathcal{P}_2 = 2.5 - 6 \text{ Вт/см}^2$ ,  $\mathcal{P}_3 = 10 - 20 \text{ Вт/см}^2$ . Как следует из табл.3, реальные наработки продукта  $P$  (по смыслу продукта) составили от 15 до 43 мг/ч для испарителя длиной  $l = 27 \text{ см}$  при концентрациях целевого изотопа  $C_{\text{pt}} = 50\% - 65\%$ . Эффективность ионизации целевого изотопа  $\eta_i^s$  при 18–25 проходах лазерного луча оказалась равной  $\sim 0.11 - 0.18$ , что существенно меньше достигнутой (0.7) в специальных экспериментах, описанных выше (см. разд.5). Это позволяет надеяться на лучшее извлечение целевого изотопа в производственной установке с более мощным ионизирующим излучением.

При заполнении рабочего объема светом в наших экспериментах лазерные лучи могли проходить по одному месту один, два и даже три раза. Для оценки примем среднее число проходов равным двум, тогда вероятность ионизации  $\eta_i^s$  при одном проходе составит  $\sim 0.055 - 0.09$ .

Очевидный ресурс увеличения удельной производительности установки состоит не только в увеличении средней плотности мощности ионизирующего излучения  $\mathcal{P}_3$ , но и в модернизации экстрактора с целью уменьшения потерь на распыление продукта при ионной бомбардировке. Ощутимую добавку может дать и включение в схему ионизации первого возбужденного состояния с населенностью  $C_{\text{lev}} \approx 26\%$  при температуре  $\sim 1430^\circ\text{C}$ .

Выполненный цикл работ по лазерному обогащению  $^{150}\text{Nd}$  позволяет оценить перспективы получения его весовых количеств, результаты экспериментов по наработке обогащенного неодама и себестоимость этого процесса. Так, при достижении в сепараторе вероятности фотоионизации целевого изотопа 0.6 и вовлечении в схему фотоионизации атомов, находящихся на первом метастабильном уровне, на установке длиной 10 м за 6000 рабочих часов можно получить  $\sim 50 \text{ кг}$  изотопной продукции. Для этого нет принципиальных препятствий: лучи лазеров распространяются на 100 м и более, а вакуумные модули легко соединяются между собой, образуя объединенную систему необходимого размера. То обстоятельство, что значительная часть аппаратуры была изготовлена в нашей лаборатории, а эксперименты проводились длительное время, дает возможность оценить капитальные и эксплуатационные затраты на производство образца массой 50 кг. В этом случае стоимость продукта оказывается в 5–7 раз меньше стоимости  $^{150}\text{Nd}$ , обогащенного электромагнитным методом.

## 7. Выводы

Опыт, накопленный при обогащении  $^{150}\text{Nd}$  лазерным методом, показал, что при его использовании, как и при других способах разделения изотопов, производительность и селективность взаимоисключают друг друга и требуется весьма деликатная оптимизация условий эксперимента для получения необходимых результатов. В статье предложен метод оценки внутренних параметров, которые являются основными для оптимизации процесса. Проведены прямые измерения вероятности фотоионизации в коллимированном пучке атомов. Экспериментально показано, что вероятность фотоионизации четных изотопов может достигать 0.7.

Полученные результаты и их надежная повторяемость позволяют надеяться, что лазерный метод может быть применен для разделения изотопов редкоземельных элементов, не имеющих летучих соединений.

Согласно оценке, себестоимость процесса лазерного выделения  $^{150}\text{Nd}$  значительно ниже, чем в случае использования для этой цели магнитных масс-сепараторов.

## 8. Литература

1. Артемьев В.А., Брахман Э.В., Васильев С.И. и др. *Ядерная физика*, **59** (1), 10 (1996).
2. Elliot S.R., Vogel P. *Ann. Rev. Nucl. Part. Sci.*, **52**, 115 (2002).
3. Кудрин Л.П., Новиков В.М., Блинкин В.Л. *Методы разделения изотопов, основанные на селективном фотовозбуждении* (Отчет ИАЭ-1968); *Брошюра РНЦ «Курчатовский институт»* (М., 2002, с. 39).
4. Летохов В.С. *О возможности разделения изотопов методами резонансной фотоионизации атомов и фотодиссоциации молекул лазерным излучением* (Отчет ФИАН, 1969); *Препринт Ин-та спектроскопии АН СССР № 1* (М., 1979, с. 1).
5. Летохов В.С. А. с. № 784679. Приоритет от 30.03.70. *БИ*, № 18, 308 (1982).
6. Амбарцумян Р.В., Калинин В.Н., Летохов В.С. *Письма в ЖЭТФ*, **13**, 305 (1971).
7. Roussel C. *Production d'une Vapeur d'Uranium et Interaction Avec un Rayonnement Infra-Rouge*. Dissertation a l'Universite Scientifique et Medicale de Grenoble (Grenoble, 1972).
8. Tussio S.A., Durbin J.W., Peterson O.G., et al. *IEEE J. Quantum Electron.*, **10** (9), 790 (1974).
9. Brinkman U., Hartig W., Telle H., Walther H. *Appl. Phys.*, **5**, 109 (1974).
10. Janes J.S., Itzkan I., Pike C.T. *IEEE J. Quantum Electron.*, **12** (2), 111 (1976).
11. Карлов Н.В., Крынецкий Б.Б., Мишин В.А. и др. *Квантовая электроника*, **3** (11), 2486 (1976).
12. Ткачев А.Н., Яковленко С.И. *Квантовая электроника*, **33** (7), 581 (2003).
13. Карлов Н.В., Крынецкий Б.Б., Мишин В.А. *Препринт ФИАН № 48* (М., 1977).
14. *Физические величины. Справочник*. Под ред. И.С.Григорьева, Е.З.Мейлихова (М.: Энергоатомиздат, 1991, с. 1232).
15. Савицкий Е.М., Терехова В.Ф. *Металловедение редкоземельных металлов* (М.: Наука, 1975).
16. Григорьев А.И., Григорьев И.С., Ковалевич С.К. и др. *Сб. докл. III Всерос. (междунар.) научной конф. «Физико-химические процессы при селекции атомов и молекул»* (Звенигород, ЦНИИАтоминформ, 1998, с. 64).
17. Кикоин И.К. *Таблицы физических величин. Справочник* (М.: Атомиздат, 1976, с. 302).
18. Радциг А.А., Смирнов Б.М. *Параметры атомов и атомных ионов. Справочник* (М.: Энергоатомиздат, 1986, с. 314).
19. Martin W.C., Zalubas R., Hagan L. *Atomic Energy Levels. The Rare-Earth Elements* (Washington, National Bureau of Standards, 1978, NSRDS-NBS, Vol. 60).
20. Van Leeuwen K.A.H., Eiel E.R., Post V.H., et al. *Zeitschrift fur Physik A - Atoms and Nuclei*, **301**, 95 (1981).
21. *Laser Applications: Isotope Separation* (Livermore: Lawrence Livermore National Laboratory, 1984, TB-067).
22. Bass I.L., Bonanno R.E., Hackel R.P., et al. *Appl. Opt.*, **31**, 6993 (1992).
23. Greenland P.T., Travis D.N., Wort D.J.H. *J. Phys. B: At. Mol. Opt. Phys.*, **24**, 2945 (1990).
24. Исаев А.А., Казарян М.А., Петраш Г.Г. *Письма в ЖЭТФ*, **16** (1), 40 (1972).
25. Беляев В.П., Зубов В.В., Исаев А.А. и др. *Квантовая электроника*, **12** (1), 74 (1985).
26. Батенин В.М., Бучанов В.В., Казарян М.А. *Лазеры на самоограниченных переходах атомов металлов* (М.: изд-во «Научная книга», 1998).
27. Фирсов В.А., Суслов В.И., Белоусов А.Б. и др. *Сб. докл. VI Всерос. (междунар.) научной конф. «Физико-химические процес-*

- сы при селекции атомов и молекул» (Звенигород, ЦНИИАтоминформ, 2002, с. 235–239).
28. Григорьев А.И., Григорьев И.С., Доровский А.П. и др. *Сб. докл. VI Всерос. (международ.) научной конф. «Физико-химические процессы при селекции атомов и молекул»* (Звенигород, ЦНИИАтоминформ, 1999, с. 91, 92).
  29. Григорьев А.И., Григорьев И.С., Доровский А.П. и др. *Сб. докл. симп. «Лазеры на парах металлов»* (Сочи, 2002).
  30. Дьячков А.Б., Лабозин В.П. *Сб. докл. VI Всерос. (международ.) научной конф. «Физико-химические процессы при селекции атомов и молекул»* (Звенигород, ЦНИИАтоминформ, 2002, с. 256–259).
  31. Дьячков А.Б., Ковалевич С.К., Песня А.В. и др. *Сб. докл. IV Всерос. (международ.) научной конф. «Физико-химические процессы при селекции атомов и молекул»* (Звенигород, ЦНИИАтоминформ, 2000, с. 120).
  32. Grigoriev I.S., Dyachkov A.B., Kuznetsov V.A., et al. *Proc. SPIE Int. Soc. Opt. Eng.*, **5121**, 411 (2003).
  33. Григорьев И.С., Дьячков А.Б., Лабозин В.П. и др. *Квантовая электроника*, **34** (5), 447 (2004).
  34. Дьячков А.Б., Лабозин В.П. *Сб. докл. VI Всерос. (международ.) научной конф. «Физико-химические процессы при селекции атомов и молекул»* (Звенигород, ЦНИИАтоминформ, 2001, с. 132).
  35. Дьячков А.Б., Лабозин В.П. *Квантовая электроника*, **32** (9), 825 (2002).
  36. Blaise J., Chevillard J., Verges J., et al. *Spectrochimica Acta B*, **25**, 333 (1970).
  37. Зюзиков А.А., Мишин В.И., Федосеев В.Н. *Оптика и спектроскопия*, **64** (3), 480 (1988).
  38. Григорьев И.С., Дьячков А.Б., Лабозин В.П. и др. *Сб. докл. VI Всерос. (международ.) научной конф. «Физико-химические процессы при селекции атомов и молекул»* (Звенигород, ЦНИИАтоминформ, 2002, с. 188).
  39. Зайдель А.Н., Островская Г.В., Островский Ю.И. *Техника и практика спектроскопии* (М.: Наука, 1976).
  40. Рамзей Н. *Молекулярные пучки* (М.: ИЛ, 1960).
  41. Ковалевич С.К., Лабозин В.П., Цветков Г.О. *ЖТФ*, **75** (1), 98 (2005).
  42. Яковленко С.И. В сб.: *7 Забалахтинские научные чтения* (Снежинск, 2003).
  43. Майоров С.А., Ткачев А.Н., Яковленко С.И. *Математическое моделирование*, **6** (9), 13 (1994).
  44. Смирнов Б.М. *Асимптотические методы в теории атомных столкновений* (М.: Атомиздат, 1973).
  45. Дьячков А.Б., Ковалевич С.К., Лабозин В.П. и др. *Сб. докл. IX Всерос. (международ.) научной конф. «Физико-химические процессы при селекции атомов и молекул»* (Звенигород, ЦНИИАтоминформ, 2004, с. 64).