

# О возможности резонансного трехфотонного изотопно-селективного возбуждения излучением двух импульсных ИК лазеров колебательных состояний с $v = 3$ моды $\nu_3$ молекул $UF_6$ в газодинамически охлажденном молекулярном потоке

Г.Н.Макаров

*Рассмотрена возможность резонансного изотопно-селективного заселения состояний с  $v = 3$  колебательной моды  $\nu_3$  молекул  $UF_6$  в результате трехфотонного бихроматического возбуждения молекул ИК излучением двух импульсных  $CF_4$ -лазеров и двух импульсных пара- $H_2$ -лазеров. Предложены конкретные схемы и анализируется возможность возбуждения молекул  $^{238}UF_6$  и  $^{235}UF_6$  в состоянии с  $v = 3$  колебательной моды  $\nu_3$  двумя  $CF_4$ -лазерами (или пара- $H_2$ -лазерами), генерирующими в области 16 мкм, на частотах, которые значительно (на  $\sim 3.5\text{--}17\text{ см}^{-1}$ ) отстроены от полос линейного поглощения на частотах колебаний  $\nu_3$  указанных молекул в газодинамически охлажденном молекулярном потоке. Однако сумма удвоенной частоты генерации первого лазера  $2\nu_{L1}$  и частоты второго лазера  $\nu_{L2}$  ( $2\nu_{L1} + \nu_{L2}$ ) равна частоте перехода  $v = 0 \rightarrow v = 3$  колебательной моды  $\nu_3$  молекул  $UF_6$ . При совпадении во времени обоих лазерных импульсов реализуется возможность селективного возбуждения молекул  $UF_6$  из основного колебательного состояния с  $v = 0$  в состояние с  $v = 3$  колебательной моды  $\nu_3$ . Предложенные схемы возбуждения молекул  $UF_6$  в состоянии с  $v = 3$  сопоставляются с реализованными ранее схемами эффективного возбуждения состояний с  $v = 3$  колебательной моды  $\nu_3$  ( $F_1$ ) и с  $v = 2$  колебательной моды  $\nu_3$  ( $A_1$ ) молекул  $SF_6$  соответственно трех- и двухчастотным излучением импульсных  $CO_2$ -лазеров.*

**Ключевые слова:** атомы, молекулы, кластеры, уран, молекулярные и кластерные пучки, лазерная спектроскопия, индуцированные лазером селективные процессы в молекулах и кластерах, лазерное разделение изотопов, лазерная физика.

## 1. Введение

Многие существовавшие в конце прошлого века проекты лазерного разделения изотопов урана по ряду причин были закрыты, однако исследования в этом направлении продолжают во многих странах и в настоящее время [1–12] (см. также ссылки в обзорах [1, 8, 9]). Сегодня исследования направлены главным образом на разработку низкоэнергетических методов молекулярного лазерного разделения изотопов (МЛРИ) урана. Среди них наиболее перспективными считаются [1, 8, 9] два: метод изотопно-селективного подавления кластеризации молекул и метод изотопно-селективной диссоциации небольших слабосвязанных ван-дер-ваальсовых кластеров (в частности, димеров) [1, 8–17]. Вероятно, именно эти процессы лежат в основе разрабатываемой сегодня в США и в Австралии лазерной технологии обогащения урана SILEX (Separation of Isotopes by Laser Excitation) [10–12] (см. также обзоры [1, 9]).

Для проведения экспериментальных исследований и выполнения проектов по МЛРИ урана методом изотопно-селективной ИК многофотонной диссоциации (МФД) молекул  $UF_6$  (методом MLIS – Molecular Laser Isotope

Separation) были созданы генерирующие в области 16 мкм оптически накачиваемый излучением мощного  $CO_2$ -лазера молекулярный  $CF_4$ -лазер [18, 19] и пара- $H_2$ -лазер на основе смещения частоты  $CO_2$ -лазера в область 16 мкм за счет стимулированного комбинационного (рамановского) рассеяния на вращательных переходах молекул водорода [20]. Указанные лазеры могут генерировать импульсы излучения длительностью  $\sim 10^{-7}$  с с энергией импульса до 0.5–1.0 Дж. По многим параметрам они удовлетворяют требованиям, которые предъявляются к работе на крупномасштабных установках [9].

Генерация  $CF_4$ -лазера происходит на переходе  $v = 1(\nu_2) + v = 1(\nu_4) \rightarrow v = 1(\nu_2)$  молекулы [18, 21–23]. Частота  $\nu_2 + \nu_4$  ( $\sim 1067\text{ см}^{-1}$ ) комбинационной полосы молекулы  $CF_4$  перекрывается с частотами генерации  $CO_2$ -лазера. Возбуждение этой комбинационной полосы излучением мощного  $CO_2$ -лазера приводит к стимулированному излучению в области 16 мкм на указанном переходе. Излучение  $CF_4$ -лазера можно дискретно перестраивать в области  $\sim 612\text{--}650\text{ см}^{-1}$  [21, 22]. Энергия импульса может достигать 0.4–0.5 Дж [19, 23–25], а частота следования импульсов – 10 Гц [23–25]. Спектр генерации лазера содержит более ста линий [21, 22].

Из-за богатой спектральной субструктуры переходов в молекуле  $CF_4$ -лазер потенциально может использоваться для точной настройки частоты излучения с шагом не более  $0.1\text{ см}^{-1}$  [24, 26]. Для более точной настройки частоты генерации  $CF_4$ -лазера на линии поглощения молекул  $UF_6$  накачка молекул  $CF_4$  осуществлялась также  $CO_2$ -

Г.Н.Макаров. Институт спектроскопии РАН, Россия, 108840 Москва, Троицк, ул. Физическая, 5;  
e-mail: gmakarov@isan.troitsk.ru

Поступила в редакцию 26 апреля 2021 г.

лазерами высокого давления с плавной перестройкой частоты [26, 27].

Существенными недостатками  $\text{CF}_4$ -лазера применительно к разделению изотопов урана являются дискретность перестройки частоты излучения по отдельным линиям и отсутствие сильных и перестраиваемых линий генерации в области Q-ветви колебания  $\nu_3$  молекул  $^{235}\text{UF}_6$  (вблизи частоты  $628.3 \text{ см}^{-1}$  [28]). Вероятно, именно поэтому с помощью данного лазера не удалось реализовать изотопно-селективную диссоциацию молекул  $\text{UF}_6$ . Однако в целом ряде работ он использовался в экспериментах по двухчастотному возбуждению и диссоциации молекул  $\text{UF}_6$ , в том числе совместно с  $\text{CO}_2$ -лазером, для изучения различных аспектов ИК МФД [9], не связанных с изотопической селективностью процесса.

До настоящего времени единственным эффективным источником ИК излучения, имеющим достаточную энергию и обеспечивающим возможность селективного возбуждения молекул  $^{235}\text{UF}_6$ , является пара- $\text{H}_2$ -лазер, причем это относится как к методу MLIS, так и к технологии SILEX. Схема эффективного источника излучения в области 16 мкм со сравнительно большой энергией впервые была предложена Байером [20]. Эта схема позволяет конвертировать энергию  $\text{CO}_2$ -лазера в энергию стоксовой волны с эффективностью не менее 20% (см. ссылки в [9]).

В основе работы пара- $\text{H}_2$ -лазера лежит процесс вынужденного комбинационного рассеяния излучения мощного  $\text{CO}_2$ -лазера на вращательных переходах молекулярного водорода. Как правило, используется паракомпонента  $\text{H}_2$  (ядерные спины двух атомов параллельны). В процессе такого неупругого рассеяния частота излучения  $\text{CO}_2$ -лазера уменьшается на величину вращательного кванта молекулы  $\text{H}_2$  ( $\sim 354.33 \text{ см}^{-1}$ ) [20]. Перестройка частоты излучения  $\text{CO}_2$ -лазера автоматически ведет к перестройке частоты излучения пара- $\text{H}_2$ -лазера. Для получения необходимого усиления и сравнительно большого коэффициента преобразования используется специальная многопроходная кювета [29].

Следует отметить, что и в случае пара- $\text{H}_2$ -лазера нет точного совпадения его линий генерации с центром Q-ветви полосы поглощения колебания  $\nu_3$  молекулы  $^{235}\text{UF}_6$  ( $\sim 628.32 \text{ см}^{-1}$  [28]). Для обеспечения такого совпадения можно использовать  $\text{CO}_2$ -лазер высокого давления с заменой изотопного состава активной среды лазера по углероду и кислороду и плавно подстраивать частоту к нужному значению. Однако это сильно усложняет экспериментальную и техническую реализацию изотопно-селективного возбуждения молекул. В то же время именно с помощью пара- $\text{H}_2$ -лазеров была реализована изотопно-селективная диссоциация молекул  $\text{UF}_6$  и осуществлено разделение изотопов урана со сравнительно высокой селективностью процесса ( $\alpha \geq 4$ ) [30, 31]. Эксперименты были выполнены японскими исследователями в Институте химических и физических исследований (RIKEN) с использованием двух [30] и трех [31] пара- $\text{H}_2$ -лазеров.

На начальном этапе работ по лазерной ИК диссоциации молекул  $\text{UF}_6$  еще не было мощных лазеров, генерирующих в области 16 мкм. Это стимулировало активные исследования в данном направлении. В числе первых предложенных методов получения перестраиваемого по линиям генерации излучения в области 16 мкм были следующие [32, 33]: генерация разностных

частот излучений  $\text{CO}$ - и  $\text{CO}_2$ -лазеров, смешение частот изгибных колебаний молекул  $\text{CO}_2$  ( $\sim 667 \text{ см}^{-1}$ ) в нелинейно-оптическом кристалле  $\text{CdTe}$ , стимулированное рамановское рассеяние на электронных переходах, а также использование оптического параметрического осциллятора, накачиваемого излучением  $\text{HF}$ -лазера [34]. В последнее время для возбуждения молекул  $\text{UF}_6$  разрабатываются также и другие лазеры. В работе [35] продемонстрирована эффективная генерация разностных частот излучений  $\text{CO}$ - и  $\text{CO}_2$ -лазеров в области 16 мкм в нелинейно-оптическом кристалле  $\text{AgGaSe}_2$ .

В качестве другого подхода к МЛРИ урана активно обсуждается метод изотопно-селективного возбуждения состояния с  $\nu = 3$  колебательной моды  $\nu_3$  молекул  $^{235}\text{UF}_6$ , для которого изотопический сдвиг составляет  $\sim 1.81 \text{ см}^{-1}$  [28, 36], излучением  $\text{CO}$ -лазера [7, 37–40]. Так, в работе [7] рассмотрена кинетика процесса разделения изотопов урана с использованием предложенной Ееркенсом [37] химической реакции колебательно-возбужденных молекул  $\text{UF}_6$  с молекулами  $\text{HCl}$ . Исследовалось возбуждение молекул  $\text{UF}_6$  в полосе колебания  $3\nu_3$  ( $\sim 1876 \text{ см}^{-1}$  [36]) излучением  $\text{CO}$ -лазера на длине волны 5.33 мкм. Из-за слабого поглощения колебания  $3\nu_3$  молекул  $\text{UF}_6$  их возбуждение рассматривалось во внутривибрационной охлаждаемой кювете. Разделение изотопов урана реализовывалось за счет различия в скоростях реакций колебательно-возбужденных и невозбужденных молекул  $\text{UF}_6$  с молекулами  $\text{HCl}$ . Этим методом в работе [38] осуществлено разделение изотопов урана с селективностью  $\alpha = 1.2$ .

Для реализации данного метода создаются мощные ( $\sim 2\text{--}3 \text{ кВт}$ )  $\text{CO}$ -лазеры [39, 40], генерирующие в области 5.3 мкм, которые можно использовать для разделения изотопов урана при возбуждении молекул  $\text{UF}_6$  в полосе колебания  $3\nu_3$ . Разрабатываются проекты по внутривибрационному лазерному разделению изотопов урана методом подавления конденсации молекул  $\text{UF}_6$  с помощью  $\text{CO}$ -лазера, генерирующего в режиме активной синхронизации мод [40]. Вместе с тем следует отметить, что эффективное заселение обертонового состояния с  $\nu = 3$  колебательной моды  $\nu_3$  молекул  $\text{UF}_6$  излучением с длиной волны  $\sim 5.33 \text{ мкм}$  проблематично из-за слабого поглощения молекул  $\text{UF}_6$  на колебательном переходе  $\nu = 0 \rightarrow \nu = 3$ . Отношение  $\Gamma_{0-3}/\Gamma_{0-1}$  интегрального поглощения в полосе  $\nu = 0 \rightarrow \nu = 3$  колебательной моды  $\nu_3$  молекулы  $\text{UF}_6$   $\Gamma_{0-3} = 3.8 \times 10^{-2} \text{ км/моль}$  к интегральному поглощению  $\Gamma_{0-1}$  в полосе  $\nu = 0 \rightarrow \nu = 1$  составляет  $5.6 \times 10^{-5}$  [41].

В связи с этим поиск альтернативных схем изотопно-селективного резонансного возбуждения высоких колебательных состояний и диссоциации молекул  $^{235}\text{UF}_6$  представляется, на наш взгляд, весьма важным и актуальным. Обсуждение и анализ альтернативных схем лазерного ИК возбуждения молекул  $\text{UF}_6$  в высокие колебательные состояния и является целью настоящей работы. В ней рассматривается возможность эффективного резонансного изотопно-селективного заселения обертоновых состояний с  $\nu = 3$  колебательной моды  $\nu_3$  молекул  $\text{UF}_6$  за счет многофотонного бихроматического возбуждения молекул ИК излучением двух  $\text{CF}_4$ -лазеров, а также двух пара- $\text{H}_2$ -лазеров. Подобный подход был успешно реализован экспериментально на примере резонансного возбуждения высоких состояний с  $\nu = 2$  и  $\nu = 3$  колебательной моды  $\nu_3$  молекул  $\text{SF}_6$  излучением двух [42] и трех [43] импульсных  $\text{CO}_2$ -лазеров.

## 2. Примеры реализации двух- и трехчастотного возбуждения высоких колебательных состояний молекул SF<sub>6</sub>

Известно [44], что многофотонное возбуждение высоких колебательных состояний молекул интенсивным лазерным излучением возможно при когерентном воздействии нескольких полей, сумма частот которых удовлетворяет условию многофотонного резонанса. В работах [42, 43] на примере SF<sub>6</sub> было показано, что эффективное заселение высоких колебательных состояний молекул можно реализовать в результате многофотонного возбуждения молекул с использованием двух [42] или трех [43] лазерных импульсов излучения, имеющих разные частоты, сумма которых равна частоте перехода молекул из основного колебательного состояния в возбуждаемое высколежающее состояние.

В работе [42] проводилось резонансное заселение состояния с  $v = 2$  колебательной моды  $\nu_3$  (A<sub>1</sub>) ( $\sim 1889.0$  см<sup>-1</sup> [45]) молекул SF<sub>6</sub> при одновременном воздействии на них двух симметрично отстроенных от резонанса с переходом  $v = 0 \rightarrow v = 1$  лазерных полей. Возбуждение охлажденных в импульсной газодинамической струе молекул SF<sub>6</sub> (в смеси [SF<sub>6</sub>]:[H<sub>2</sub>] = 1:20) проводилось излучениями плавно перестраиваемого CO<sub>2</sub>-лазера высокого давления и перестраиваемого по линиям генерации TEA CO<sub>2</sub>-лазера с частотами соответственно  $\nu_{L1}$  и  $\nu_{L2}$ . Частота Q-ветви полосы поглощения колебательной моды  $\nu_3$  молекулы SF<sub>6</sub> равна  $\sim 948.1$  см<sup>-1</sup> [46]. Частота излучения плавно перестраиваемого CO<sub>2</sub>-лазера  $\nu_{L1}$  изменялась в диапазоне 936–952 см<sup>-1</sup>. Дискретно перестраиваемый по частоте лазер настраивался в низкочастотной области полосы линейного поглощения колебательной моды  $\nu_3$  молекулы SF<sub>6</sub> на линию излучения либо 10P(26) (частота  $\nu_{L2} = 938.69$  см<sup>-1</sup>), либо 10P(28) ( $\nu_{L2} = 936.80$  см<sup>-1</sup>).

Резонансное возбуждение состояния с  $v = 2$  колебательной моды  $\nu_3$  (A<sub>1</sub>) ( $\sim 1889.0$  см<sup>-1</sup>) молекулы SF<sub>6</sub> происходило, когда выполнялось условие  $\nu_{L1} + \nu_{L2} = 1889.0$  см<sup>-1</sup>. Диссоциация молекул осуществлялась на частоте  $\nu_{L3} = 929.02$  см<sup>-1</sup> (линия 10P(36) лазера). Выход диссоциации SF<sub>6</sub> измерялся по интенсивности ИК люминесценции колебательно-возбужденных молекул HF\*, образующихся в результате реакции атомов фтора (продукта диссоциации SF<sub>6</sub>) с молекулами водорода. Показано [42], что с помощью используемой схемы через состояние с  $v = 2$  колебательной моды  $\nu_3$  (A<sub>1</sub>) можно возбудить из основного состояния около 30% молекул SF<sub>6</sub>. Таким же способом в работе [42] проведено резонансное возбуждение высоких колебательных состояний моды  $\nu_3$  ( $\sim 960$  см<sup>-1</sup> [47]) молекул OsO<sub>4</sub>. Установлено [42], что эту методику можно применить для изотопно-селективной диссоциации молекул.

В работе [43] было реализовано эффективное резонансное возбуждение состояния с  $v = 3$  колебательной моды  $\nu_3$  (F<sub>1</sub>) ( $\sim 2827.55$  см<sup>-1</sup> [45]) молекул SF<sub>6</sub>, охлажденных в импульсной газодинамической струе импульсами излучения трех дискретно перестраиваемых по частоте CO<sub>2</sub>-лазеров. Колебательная, вращательная и поступательная температуры молекул в струе таковы:  $T_{\text{vib}} \leq 150$  К,  $T_{\text{rot}} \approx T_{\text{tr}} \leq 20$  К [48]. Ширина полосы ИК поглощения на переходе  $v = 0 \rightarrow v = 1$  колебательной моды  $\nu_3$  молекул SF<sub>6</sub> при таком охлаждении составляет менее 3.5 см<sup>-1</sup> на полувысоте [48]. Используемые для возбуждения молекул

лазеры работали на частотах  $\nu_{L1} = 951.19$  см<sup>-1</sup> (линия 10P(12)),  $\nu_{L2} = 956.18$  см<sup>-1</sup> (линия 10P(6)) и  $\nu_{L3} = 920.83$  см<sup>-1</sup> (линия 10P(44)). Отстройки указанных частот генерации от частоты Q-ветви перехода  $v = 0 \rightarrow v = 1$  молекул SF<sub>6</sub> были равны  $\sim 3.1 - 27.2$  см<sup>-1</sup>.

Отметим, что ни одна из частот генерации лазеров, используемых для возбуждения молекул SF<sub>6</sub>, ни в отдельности, ни попарно не находилась в резонансе с низколежащими колебательными переходами молекулы. Однако суммарная частота излучений лазеров с довольно хорошей точностью (отстройка менее 0.35 см<sup>-1</sup>) была равна частоте перехода  $v = 0 \rightarrow v = 3$  колебательной моды  $\nu_3$  (F<sub>1</sub>) ( $\sim 2827.55$  см<sup>-1</sup> [45]) ( $\nu_{L1} + \nu_{L2} + \nu_{L3} = 2827.20$  см<sup>-1</sup> [43]). Эффект резонансного заселения состояния с  $v = 3$  колебательной моды  $\nu_3$  (F<sub>1</sub>) молекул SF<sub>6</sub> регистрировался путем измерения поглощенной молекулами энергии в условиях раздельного и одновременного воздействия на них всеми тремя импульсами. Установлено [43], что при совпадении во времени всех трех импульсов происходит эффективное возбуждение молекул SF<sub>6</sub> через колебательное состояние с  $v = 3$  ( $\nu_3$ , F<sub>1</sub>). При этом происходило также возбуждение молекул в более высокие колебательные состояния.

## 3. Предлагаемые схемы резонансного трехфотонного бихроматического возбуждения состояний с $v = 3$ колебательной моды $\nu_3$ молекул UF<sub>6</sub>

На основе анализа данных об уровнях энергии возбужденных колебательных состояний моды  $\nu_3$  молекул <sup>238</sup>UF<sub>6</sub> [28, 36] и о частотах излучения CF<sub>4</sub>-лазера [21, 22] и пара-Н<sub>2</sub>-лазера нами предлагаются конкретные схемы изотопно-селективного трехфотонного заселения обертоновых состояний с  $v = 3$  колебательных мод  $\nu_3$  (F<sub>1</sub>),  $\nu_3$  (F<sub>2</sub>) и  $\nu_3$  (A<sub>2</sub>) молекул <sup>238</sup>UF<sub>6</sub> и <sup>235</sup>UF<sub>6</sub> излучением двух CF<sub>4</sub>-лазеров, а также двух пара-Н<sub>2</sub>-лазеров. Эти схемы применимы к молекулам UF<sub>6</sub>, охлажденным в газодинамическом потоке (см. ниже). При выборе и анализе схем и частот для возбуждения молекул <sup>235</sup>UF<sub>6</sub> учитывалась величина изотопического сдвига в ИК спектрах поглощения в колебательной моде  $\nu_3$  молекул <sup>235</sup>UF<sub>6</sub> и <sup>238</sup>UF<sub>6</sub>, которая для третьих обертонов колебаний этих молекул составляет  $\sim 1.8$  см<sup>-1</sup> [28]. При выборе оптимальных частот для возбуждения молекул UF<sub>6</sub> рассматривались только наиболее интенсивные линии генерации как CF<sub>4</sub>-лазеров [21, 22], так и CO<sub>2</sub>-лазеров, которые применяются для накачки пара-Н<sub>2</sub>-лазеров. При использовании предложенных схем возбуждения состояний с  $v = 3$  колебательной моды  $\nu_3$  молекул UF<sub>6</sub> нет необходимости в дополнительной подстройке частот генерации лазеров для резонансного возбуждения молекул, поскольку отстройки суммарных частот излучений лазеров от частот возбуждаемых состояний незначительны (см. ниже рис. 1, а и табл. 1 и 2).

Наиболее интенсивной линией генерации CF<sub>4</sub>-лазера является линия на частоте  $\sim 615.1$  см<sup>-1</sup> [21, 22], которая генерируется при накачке молекул CF<sub>4</sub> излучением CO<sub>2</sub>-лазера на линии 9R(12) (частота 1073.28 см<sup>-1</sup>). Довольно интенсивными являются также линии излучения CF<sub>4</sub>-лазера на частотах  $\sim 612.2$ ,  $\sim 618.2$ ,  $\sim 631.4$ ,  $\sim 642.4$ ,  $\sim 643.1$  и  $\sim 645.1$  см<sup>-1</sup> [21, 22]. При выборе частот для многофотонного возбуждения состояний с  $v = 3$  колебательной моды  $\nu_3$  молекул UF<sub>6</sub> нами учитывались, прежде всего, именно эти линии излучения CF<sub>4</sub>-лазера. Следует отметить, что

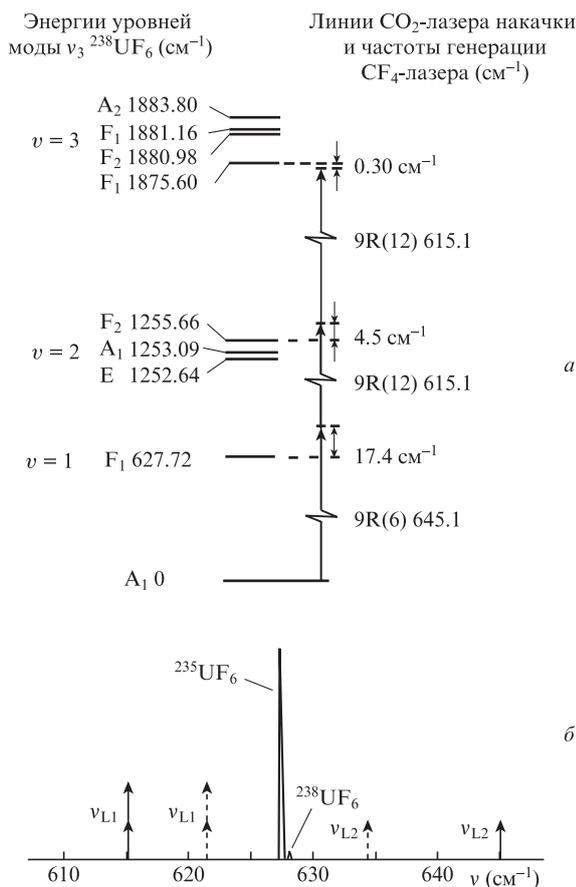


Рис.1. Схема резонансного трехфотонного бихроматического возбуждения молекул <sup>238</sup>UF<sub>6</sub> в состояние с *v* = 3 колебательной моды *v*<sub>3</sub> (F<sub>1</sub>) (~1875.6 см<sup>-1</sup>) излучением двух CF<sub>4</sub>-лазеров (энергии уровней моды *v*<sub>3</sub> молекул <sup>238</sup>UF<sub>6</sub> взяты из [36]) (а) и частоты линий излучения двух CF<sub>4</sub>-лазеров (сплошные стрелки) и двух пара-Н<sub>2</sub>-лазеров (штриховые стрелки), используемых для резонансного трехфотонного бихроматического возбуждения молекул <sup>238</sup>UF<sub>6</sub> и <sup>235</sup>UF<sub>6</sub> в состоянии с *v* = 3 колебательной моды *v*<sub>3</sub> (F<sub>1</sub>) (~1875.6 см<sup>-1</sup> для <sup>238</sup>UF<sub>6</sub> и ~1877.4 см<sup>-1</sup> для <sup>235</sup>UF<sub>6</sub>), а также Q-ветви полос линейного поглощения на основных частотах колебания *v*<sub>3</sub> молекул <sup>238</sup>UF<sub>6</sub> и <sup>235</sup>UF<sub>6</sub> в газодинамически охлажденном молекулярном потоке при *T* ≤ 50 К (Q-ветви показаны качественно [32]) (б).

частоты многих таких линий определены с погрешностью не менее 0.1 см<sup>-1</sup> [21, 22]. С гораздо меньшей погрешностью (~0.01 см<sup>-1</sup>) определены энергии (частоты) возбужденных колебательных состояний вплоть до состояний с *v* = 6 колебательной моды *v*<sub>3</sub> молекул <sup>238</sup>UF<sub>6</sub> [36]. Энергии

возбужденных колебательных состояний молекул <sup>235</sup>UF<sub>6</sub> определялись с учетом изотопических сдвигов Δ<sub>is</sub> ≈ 0.604 см<sup>-1</sup> [28] в состояниях с *v* = 1 колебательных мод *v*<sub>3</sub> для молекул <sup>238</sup>UF<sub>6</sub> и <sup>235</sup>UF<sub>6</sub> и Δ<sub>is</sub> ≈ 1.81 см<sup>-1</sup> в состояниях с *v* = 3 колебательных мод *v*<sub>3</sub> для тех же молекул.

На рис.1,а представлена схема заселения состояния с *v* = 3 колебательной моды *v*<sub>3</sub> (F<sub>1</sub>) молекул <sup>238</sup>UF<sub>6</sub> (~1875.6 см<sup>-1</sup> [36]) излучением двух CF<sub>4</sub>-лазеров, работающих на частотах *v*<sub>L1</sub> ≈ 615.1 см<sup>-1</sup> и *v*<sub>L2</sub> ≈ 645.1 см<sup>-1</sup>. Трехфотонное бихроматическое возбуждение указанного состояния реализуется при отстройке в конечном состоянии Δ*v*<sub>fin</sub> ≈ +0.3 см<sup>-1</sup> (2*v*<sub>L1</sub> + *v*<sub>L2</sub> = 1875.3 см<sup>-1</sup>). На рис.1,б для данного примера приведены частоты линий генерации CF<sub>4</sub>-лазеров и Q-ветви полос линейного поглощения на основных частотах колебания *v*<sub>3</sub> молекул <sup>238</sup>UF<sub>6</sub> и <sup>235</sup>UF<sub>6</sub> [32]. Частоты линий генерации пара-Н<sub>2</sub>-лазеров для одной из схем возбуждения (см. ниже) отмечены штриховыми стрелками. Ширины P- и R-ветвей (не приведены на рис.1) газодинамически охлажденных молекул UF<sub>6</sub> при *T* ≤ 50 К не превышают 2 см<sup>-1</sup> [28].

Отметим, что указанные частоты генерации лазеров ни по отдельности, ни попарно не находятся в резонансе с низколежащими переходами молекул UF<sub>6</sub> [36]. В условиях низкой колебательной и низкой вращательной температур молекул в газодинамически охлажденном потоке это означает, что молекулы могут возбуждаться в высокие колебательные состояния главным образом через резонансный канал, т.е. через состояние с *v* = 3 колебательной моды *v*<sub>3</sub> (F<sub>1</sub>). Дальнейшее возбуждение и диссоциация возбужденных молекул возможны, ввиду высокой плотности колебательных состояний молекул <sup>238</sup>UF<sub>6</sub>, преимущественно за счет поглощения излучения лазера, имеющего более низкую частоту *v*<sub>L1</sub> ≈ 615.1 см<sup>-1</sup>, поскольку она находится в «лучшем» резонансе с высоколежащими колебательными переходами молекулы. Отметим, что в данном примере используемая для возбуждения состояния с *v* = 3 колебательной моды *v*<sub>3</sub> (F<sub>1</sub>) молекулы <sup>238</sup>UF<sub>6</sub> комбинация частот излучения лазеров подходит и для дальнейшего резонансного возбуждения молекул из колебательного состояния с *v* = 3 (*v*<sub>3</sub>, F<sub>1</sub>) в состояние с *v* = 6 (*v*<sub>3</sub>, A<sub>1</sub>) (~3750.92 см<sup>-1</sup> [36]) с отстройкой по частоте также всего лишь около +0.3 см<sup>-1</sup>.

В табл.1 приведены параметры предложенных нами возможных схем резонансного трехфотонного бихроматического заселения состояний с *v* = 3 колебательных мод *v*<sub>3</sub> молекул <sup>238</sup>UF<sub>6</sub> и <sup>235</sup>UF<sub>6</sub> ИК излучением двух CF<sub>4</sub>-лазеров, в частности в первой строке даны параметры

Табл.1. Параметры возможных схем резонансного трехфотонного бихроматического возбуждения состояний с *v* = 3 колебательных мод *v*<sub>3</sub> молекул <sup>238</sup>UF<sub>6</sub> и <sup>235</sup>UF<sub>6</sub> ИК излучением двух CF<sub>4</sub>-лазеров.

Схема	Молекула	Возбуждаемое состояние и его энергия (см <sup>-1</sup> )	Частота генерации CF <sub>4</sub> -лазера 1 <i>v</i> <sub>L1</sub> (см <sup>-1</sup> )	Линия и частота генерации СО <sub>2</sub> -лазера 1 накачки (см <sup>-1</sup> )	Частота генерации CF <sub>4</sub> -лазера 2 <i>v</i> <sub>L2</sub> (см <sup>-1</sup> )	Линия и частота генерации СО <sub>2</sub> -лазера 2 накачки (см <sup>-1</sup> )	Частотная отстройка в конечном состоянии Δ <i>v</i> <sub>fin</sub> = 3 <i>v</i> <sub>3</sub> - (2 <i>v</i> <sub>L1</sub> + <i>v</i> <sub>L2</sub> ) (см <sup>-1</sup> )
1	<sup>238</sup> UF <sub>6</sub>	3 <i>v</i> <sub>3</sub> F <sub>1</sub> (1875.60)	615.1 × 2	9R(12), 1073.28	645.1	9R(6), 1058.95	+0.30
2	<sup>238</sup> UF <sub>6</sub>	3 <i>v</i> <sub>3</sub> F <sub>2</sub> (1880.98)	631.4 × 2	9R(22), 1079.85	618.2	9R(10), 1071.90	-0.02
3	<sup>238</sup> UF <sub>6</sub>	3 <i>v</i> <sub>3</sub> F <sub>1</sub> (1881.16)	618.2 × 2	9R(10), 1071.90	645.1	9P(6), 1058.96	-0.34
4	<sup>235</sup> UF <sub>6</sub>	3 <i>v</i> <sub>3</sub> F <sub>1</sub> (1877.41)	618.2 × 2	9R(10), 1071.90	640.9	9R(16), 1075.99	+0.11
5	<sup>235</sup> UF <sub>6</sub>	3 <i>v</i> <sub>3</sub> F <sub>1</sub> (1877.41)	631.4 × 2	9R(22), 1079.85	615.1	9R(12), 1073.28	-0.49
6	<sup>235</sup> UF <sub>6</sub>	3 <i>v</i> <sub>3</sub> F <sub>2</sub> (1882.78)	615.1 × 2	9R(12), 1073.28	652.2	9P(10), 1055.63	+0.38

Табл.2. Параметры возможных схем резонансного трехфотонного бихроматического возбуждения состояний с  $v = 3$  колебательных мод  $\nu_3$  молекул  $^{238}\text{UF}_6$  и  $^{235}\text{UF}_6$  ИК излучением двух пара- $\text{H}_2$ -лазеров. При стимулированном комбинационном рассеянии на вращательных уровнях параводорода частота генерации  $\text{CO}_2$ -лазера уменьшается на  $354.33 \text{ см}^{-1}$  [20].

Схема	Молекула	Возбуждаемое состояние и его энергия ( $\text{см}^{-1}$ )	Частота генерации пара- $\text{H}_2$ -лазера 1 $\nu_{L1}$ ( $\text{см}^{-1}$ )	Линия и частота генерации $\text{CO}_2$ -лазера 1 накачки ( $\text{см}^{-1}$ )	Частота генерации пара- $\text{H}_2$ -лазера 2 $\nu_{L2}$ ( $\text{см}^{-1}$ )	Линия и частота генерации $\text{CO}_2$ -лазера 2 накачки ( $\text{см}^{-1}$ )	Частотная отстройка в конечном состоянии $\Delta\nu_{\text{fin}} = 3\nu_3 - (2\nu_{L1} + \nu_{L2})$ ( $\text{см}^{-1}$ )
1	$^{238}\text{UF}_6$	$3\nu_3 \text{ F}_1$ (1875.60)	$621.60 \times 2$	10R(20), 975.93	632.24	10R(38), 986.57	+0.16
2	$^{238}\text{UF}_6$	$3\nu_3 \text{ F}_2$ (1880.98)	$622.88 \times 2$	10R(22), 977.21	635.32	10R(44), 989.65	-0.10
3	$^{238}\text{UF}_6$	$3\nu_3 \text{ F}_1$ (1881.16)	$622.88 \times 2$	10R(22), 977.21	635.32	10R(44), 989.65	+0.08
4	$^{235}\text{UF}_6$	$3\nu_3 \text{ F}_1$ (1877.41)	$621.60 \times 2$	10R(20), 975.93	634.32	10R(42), 988.65	-0.11
5	$^{235}\text{UF}_6$	$3\nu_3 \text{ F}_2$ (1882.79)	$631.16 \times 2$	10R(36), 985.49	620.29	10R(18), 974.62	+0.18
6	$^{235}\text{UF}_6$	$3\nu_3 \text{ A}_2$ (1885.61)	$626.58 \times 2$	10R(28), 980.91	632.24	10R(38), 986.57	+0.21

рассмотренной выше схемы возбуждения состояния с  $v = 3$  ( $\nu_3, \text{F}_1$ ). Энергии состояний с  $v = 3$  ( $\nu_3$ ) молекулы  $^{235}\text{UF}_6$  определялись нами путем смещения уровней с  $v = 3$  ( $\nu_3$ ) молекулы  $^{238}\text{UF}_6$  в высокочастотную область на величину изотопического сдвига для указанных молекул в состоянии с  $v = 3$  ( $\nu_3$ ), равную  $\sim 1.81 \text{ см}^{-1}$  (с учетом изотопического сдвига  $\Delta\nu_{\text{is}} \approx 0.604 \text{ см}^{-1}$  для состояния с  $v = 1$  колебательной моды  $\nu_3$  [28]).

В табл.2 приведены параметры предложенных нами возможных схем резонансного трехфотонного бихроматического заселения состояний с  $v = 3$  колебательных мод  $\nu_3$  молекул  $^{238}\text{UF}_6$  и  $^{235}\text{UF}_6$  ИК излучением двух пара- $\text{H}_2$ -лазеров. Частоты линий генерации пара- $\text{H}_2$ -лазеров для схемы 4 (табл.2) возбуждения состояния с  $v = 3$  колебательной моды  $\nu_3$  ( $\text{F}_1$ ) молекулы  $^{235}\text{UF}_6$  указаны на рис.1,б штриховыми стрелками. Отметим, что в схемах 2–4 для накачки пара- $\text{H}_2$ -лазеров используются линии 10R(42) и 10R(44) излучения  $\text{CO}_2$ -лазеров, относительно далеко отстроенные от максимума полосы генерации 10R-ветви. Энергии излучения  $\text{CO}_2$ -лазеров на этих линиях, вероятно, не слишком большие. В схемах 1, 5 и 6 используются довольно интенсивные линии генерации  $\text{CO}_2$ -лазеров, что позволяет получить также интенсивную генерацию пара- $\text{H}_2$ -лазеров.

Следует отметить, что для оптимального изотопно-селективного возбуждения состояний с  $v = 3$  колебательных мод  $\nu_3$  молекул  $^{238}\text{UF}_6$  необходимо обеспечить либо как можно более точный резонанс при возбуждении, либо возбуждение с небольшой положительной отстройкой суммарной частоты генерации лазеров от частоты возбуждаемого состояния ( $\Delta\nu_{\text{fin}} = 3\nu_3 - (2\nu_{L1} + \nu_{L2}) > 0$ ), а для оптимального изотопно-селективного возбуждения состояний с  $v = 3$  колебательных мод  $\nu_3$  молекул  $^{235}\text{UF}_6$  необходимо обеспечить либо как можно более точный резонанс при возбуждении, либо возбуждение с небольшой отрицательной отстройкой суммарной частоты генерации лазеров от частоты возбуждаемого состояния ( $\Delta\nu_{\text{fin}} < 0$ ). Это связано с тем, что даже в случае глубокого охлаждения  $\text{UF}_6$  в газодинамических потоках сравнительно большая доля молекул находится [9, 32] на низколежащих колебательных уровнях с  $v = 1$  ( $\nu_6 \approx 143 \text{ см}^{-1}$ ), с  $v = 1$  ( $\nu_4 \approx 187.5 \text{ см}^{-1}$ ), с  $v = 1$  ( $\nu_5 \approx 201 \text{ см}^{-1}$ ), с  $v = 2$  ( $2\nu_6 \approx 286 \text{ см}^{-1}$ ) [28]. Так, например, при уже довольно низкой температуре ( $T \approx 70 \text{ К}$ ) населенность основного колебательного состояния  $\text{UF}_6$  составляет не более 75%, в то время как остальные молекулы распределены между низколежащими колебательными уровнями. И лишь при тем-

пературе  $T \leq 50 \text{ К}$  населенность этого состояния составляет не менее 92% [1, 32]. Частоты переходов молекул с низколежащих колебательных уровней незначительно смещены из-за межмодового ангармонизма в красную область относительно полосы поглощения молекул из основного колебательного состояния [49]. Поэтому при сравнительно высоких температурах  $\text{UF}_6$  наряду с резонансным возбуждением молекул из основного состояния на тех же лазерных частотах возможно возбуждение молекул из заселенных низколежащих колебательных состояний, что может привести к заметному уменьшению изотопической селективности процесса возбуждения верхних уровней.

Отметим, что с использованием двух ИК лазеров можно осуществить эффективное бихроматическое изотопно-селективное возбуждение состояний с  $v = 2$  колебательных мод  $\nu_3$  молекул  $\text{UF}_6$  ( $\sim 1253 \text{ см}^{-1}$  [36]). Это представляет большой интерес для реализации более эффективного возбуждения молекул за счет двухфотонных процессов. Однако в плане практической реализации рассматриваемого метода разделения изотопов урана резонансное трехфотонное возбуждение состояний с  $v = 3$  колебательных мод  $\nu_3$  молекул  $\text{UF}_6$  излучением двух лазеров представляется более предпочтительным. При таком возбуждении, как уже упоминалось выше, для тех же лазеров в ряде случаев реализуются резонансные переходы в довольно высокие колебательные состояния с  $v = 6$  ( $\nu_3$ ). Дальнейшая диссоциация молекул из этих состояний, находящихся в области очень высокой плотности колебательных уровней, будет эффективно происходить под действием тех же лазерных импульсов. Кроме того, как показано на примере молекул  $\text{SF}_6$  в работах [42, 43], в случае трехфотонного возбуждения молекул при совпадении во времени всех трех лазерных импульсов достигается более контрастное заселение возбуждаемого состояния с  $v = 3$  ( $\nu_3$ ), чем при двухфотонном возбуждении состояния с  $v = 2$  ( $\nu_3$ ). Это означает, что в первом случае создается довольно узкое распределение колебательно-возбужденных молекул, следствием чего является более высокая селективность процесса их диссоциации [49].

#### 4. Заключение

На основе спектроскопических данных об обертоновых состояниях колебательной моды  $\nu_3$  молекул  $\text{UF}_6$  и об изотопическом сдвиге для молекул  $^{238}\text{UF}_6$  и  $^{235}\text{UF}_6$  в этой моде выполнен анализ возможности резонансного мно-

гофотонного изотопно-селективного возбуждения состояний с  $v = 3$  колебательных мод  $\nu_3$  молекул  $\text{UF}_6$  излучением двух импульсных ИК лазеров.

Рассмотрены конкретные схемы резонансного трехфотонного бихроматического заселения состояний с  $v = 3$  ( $\nu_3$ ) молекул  $^{238}\text{UF}_6$  и  $^{235}\text{UF}_6$ , охлажденных до температуры  $T \leq 50-70$  К в газодинамическом потоке, ИК излучением двух  $\text{CF}_4$ -лазеров, а также двух пара- $\text{H}_2$ -лазеров.

Предложенные в настоящей работе схемы резонансного изотопно-селективного трехфотонного бихроматического возбуждения колебательных состояний с  $v = 3$  ( $\nu_3$ ) молекул  $\text{UF}_6$  следует, по нашему мнению, иметь в виду, наряду с другими схемами и методами изотопно-селективного лазерного ИК возбуждения и диссоциации молекул  $\text{UF}_6$ , при разработке технологий МЛПИ урана.

Автор выражает глубокую благодарность А.Н.Петину за помощь в работе над рисунками.

- Макаров Г.Н. *УФН*, **185**, 717 (2015) [*Phys. Usp.*, **58**, 670 (2015)].
- Kim J., Eerkens J.W., Miller W.H. *Nucl. Sci. Eng.*, **156**, 219 (2007).
- Eerkens J.W., Kim J. *AIChE J.*, **56** (9), 2331 (2010).
- Mathi P., Parthasarathy V., Nayak A.K., Mittal J.P., Sarkar S.K. *Proc. Nat. Acad. Sci. India. Sect. A: Phys. Sci.*, **1** (2015). DOI:10.1007/s40010-015-0249-6.
- Ronander E., Strydom H.J., Botha R.L. *Pramana - J. Phys.*, **82** (1), 49 (2014).
- Ferguson C.D., Boureston J; <https://www.iranwatch.org/sites/default/files/perspex-fwi-Laser.pdf>.
- Li Y., Zhang Y., Kuang Y., Liu W., Zhang X., Qiu Y., Xu Y., Chen M., Liu J. *Opt. Commun.*, **283**, 2575 (2010).
- Макаров Г.Н. *УФН*, **190**, 264 (2020) [*Phys. Usp.*, **63**, 245 (2020)].
- Макаров Г.Н. *УФН*. DOI:10.3367/UFNr.2021.02.038942 [*Phys. Usp.* DOI:10.3367/UFNe.2021.02.038942].
- SILEX Systems Limited*; <http://www.silex.com.au>.
- SILEX Process*; [www.chemeurope.com/en/encyclopedia/Silex\\_Process.html](http://www.chemeurope.com/en/encyclopedia/Silex_Process.html).
- SILEX Uranium Enrichment, SILEX Annual Report 2020*; <http://www.silex.com.au>.
- Апатин В.М., Лохман В.Н., Макаров Г.Н., Огурок Н.-Д.Д., Рябов Е.А. *Квантовая электроника*, **48**, 157 (2018) [*Quantum Electron.*, **48**, 157 (2018)].
- Lokhman V.N., Makarov G.N., Malinovskii A.L., Petin A.N., Poydashev D.G., Ryabov E.A. *Laser Phys.*, **28**, 105703 (2018).
- Макаров Г.Н., Огурок Н.-Д.Д., Петин А.Н. *Квантовая электроника*, **48**, 667 (2018) [*Quantum Electron.*, **48**, 667 (2018)].
- Лохман В.Н., Макаров Г.Н., Петин А.Н., Пойдашев Д.Г., Рябов Е.А. *ЖЭТФ*, **155**, 216 (2019) [*JETP*, **128**, 188 (2019)].
- Петин А.Н., Макаров Г.Н. *Квантовая электроника*, **49**, 593 (2019) [*Quantum Electron.*, **49**, 593 (2019)].
- Tiee J.J., Wittig C. *Appl. Phys. Lett.*, **30**, 420 (1977).
- Tiee J.J., Fischer T.A., Wittig C. *Rev. Sci. Instrum.*, **50**, 958 (1979).
- Byer R.L. *IEEE J. Quantum. Electron.*, **12**, 732 (1976).
- McDowell R.S., Patterson C.W., Jones C.R., Buchwald M.I., Telle J.M. *Opt. Lett.*, **4**, 274 (1979).
- Patterson C.W., McDowell R.S., Nereson N.G. *IEEE J. Quantum Electron.*, **16**, 1164 (1980).
- Грасюк А.З., Летохов В.С., Лобко В.В. *Квантовая электроника*, **7**, 2261 (1980) [*Sov. J. Quantum Electron.*, **10**, 1317 (1980)].
- Алимпиев С.С., Баронов Г.С., Карпов Н.В., Карчевский А.И., Марцынкьян В.А., Набиев Ш.Ш., Сартаков Б.Г., Хохлов Э.М. *Квантовая электроника*, **6**, 553 (1979) [*Sov. J. Quantum Electron.*, **9**, 329 (1979)].
- Баранов В.Ю., Казаков С.А., Межевов В.С., Напартович А.П., Орлов М.Ю., Письменный В.Д., Стародубцев А.И. *Квантовая электроника*, **7**, 87 (1980) [*Sov. J. Quantum Electron.*, **10**, 47 (1980)].
- Gupta P.K., Mehendale S.C. *Hyperfine Interact.*, **37**, 243 (1987).
- Telle J. *IEEE J. Quantum Electron.*, **19**, 1469 (1983).
- Aldridge J.P., Brock E.G., Filip H., Flicker H., Fox K., Galbraith H.W., Holland R.F., Kim K.C., Krohn B.J., Magnuson D.W., Maier W.B. II, McDowell R.S., Patterson C.W., Person W.B., Smith D.F., Werner G.K. *J. Chem. Phys.*, **83**, 34 (1985).
- Trutna W.R., Byer R.L. *Appl. Opt.*, **19**, 301 (1980).
- Takeuchi K., Tashiro H., Kato S., Midorikava K., Oyama T., Satooka S., Namba S. *J. Nucl. Sci. Technol.*, **26**, 301 (1989).
- Okada Y., Kato S., Sunouchi K., Satooka S., Tashiro H., Takeuchi K. *Appl. Phys. B*, **62**, 77 (1996).
- Jensen R.J., Judd O.P., Sullivan J.A. *Los Alamos Sci.*, №4, 2 (1982).
- Becker F.S., Kompa K.L. *Nucl. Technol.*, **58**, 329 (1982).
- Wenzel R.G., Arnold C.P. *Appl. Opt.*, **15** (5), 1322 (1976).
- Budilova O.V., Ionin A.A., Kinyaevskiy I.O., Klimachev Yu.M., Kotkov A.A., Kozlov A.Yu. *Opt. Commun.*, **363**, 26 (2016).
- Krohn B.J., McDowell R.S., Patterson C.W., Nereson N.G., Reisfeld M.J., Kim K.C. *J. Mol. Spectrosc.*, **132**, 285 (1988).
- Eerkens J.W., Griot R.P., Hardin J.H., Smith R.G. *Techn. Dig. Conf. on Lasers and Electro-Optics* (Optical Society of America, 1986); <https://www.osapublishing.org/abstract.cfm?URI=CLEO-1986-TU14>.
- Xu Bao-yu, Liu Yong, Dong Wen-bo, Zheng Cheng-fa, Zhao You-yuan, Wang Guo-yhi, Qian Hong-sheng. *Int. Nucl. Inf. Syst.*, **21** (20) (1990); [https://inis.iaea.org/search/search.aspx?orig\\_q=RN:21077879](https://inis.iaea.org/search/search.aspx?orig_q=RN:21077879).
- Budilova O.V., Ionin A.A., Kinyaevskiy I.O., Klimachev Yu.M., Kotkov A.A., Kozlov A.Yu. *Opt. Commun.*, **345**, 163 (2015).
- Baranov I.Y., Koptev A.V. *Proc. SPIE*, **7915**, 7915F (2011), DOI: 10.1117/12871578.
- Laguna G.A., Kim K.C., Patterson C.W., Reisfeld M.J., Seitz D.M. *Chem. Phys. Lett.*, **75**, 357 (1980).
- Алимпиев С.С., Никифоров С.М., Сартаков Б.Г., Хохлов Э.М., Штарков А.Л. *Квантовая электроника*, **12**, 434 (1985) [*Sov. J. Quantum Electron.*, **15**, 289 (1985)].
- Апатин В.М., Лохман В.Н., Макаров Г.Н. *Laser Chem.*, **5**, 231 (1985).
- Летохов В.С., Чеботаев В.П. *Принципы нелинейной лазерной спектроскопии* (М.: Наука, 1975, с.107-113).
- Patterson C.W., Krohn B.J., Pine A.S. *Opt. Lett.*, **6**, 39 (1981).
- McDowell R.S., Krohn B.J., Flicker H., Vasquez M. *Spectrochim. Acta. Part A*, **42** (2-3), 351 (1986).
- McDowell R.S., Goldblatt M. *Inorg. Chem.*, **10**, 625 (1971).
- Апатин В.М., Макаров Г.Н. *ЖЭТФ*, **84**, 15 (1983) [*Sov. Phys. JETP*, **57**, 8 (1983)].
- Bagratashvili V.N., Letokhov V.S., Makarov A.A., Ryabov E.A. *Multiple Photon Infrared Laser Photophysics and Photochemistry* (Chur: Harwood Acad. Publ., 1985).