

# Селективное фотохимическое “выжигание” изотопа при взаимодействии резонансного лазерного излучения с атомами

П. А. Бохан, Д. Э. Закревский, Н. В. Фатеев<sup>1)</sup>

Институт физики полупроводников Сибирского отд. РАН, 630090 Новосибирск, Россия

Поступила в редакцию 25 декабря 2001 г.

Экспериментально реализован метод лазерного разделения изотопов цинка и рубидия, основанный на селективном “выжигании” возбужденных атомов в потоке с буферным газом и газом-реагентом. Селективное возбуждение изотопа проведено однофотонным способом с использованием слабых линий поглощения и на краю доплеровского контура поглощения атомов с малой величиной изотопного сдвига.

PACS: 42.62.Fi

Лазерное разделение изотопов традиционными методами [1] для многих элементов встречает большие затруднения. Во-первых, для них изотопическое расщепление оказывается скрытым доплеровским контуром спектральных линий. В этом случае для повышения селективности фотовозбуждения используют известные методы сужения контуров поглощения: метод атомного пучка и метод двухфотонного возбуждения в стоячей световой волне. Для ряда атомов использование этих методов неэффективно. С одной стороны, они плохо аккомодируются даже на холодных поверхностях, в результате чего трудно получить хорошо коллимированный атомный пучок [2]. С другой стороны, использование метода двухфотонного возбуждения требует наличия двух мощных перестраиваемых источников излучений в ультрафиолетовой области спектра [3], что усложняет и удорожает экспериментальную установку по лазерному разделению изотопов. Во-вторых, даже при хорошей селективности и эффективном возбуждении нижних рабочих состояний не всегда удается подобрать приемлемые маршруты ионизации или перекачки нужного изотопа на следующие возбужденные уровни.

В данной работе для атомов цинка и рубидия (два различных примера возбуждения) экспериментально продемонстрирован другой способ разделения изотопов, который применим для многих элементов. Метод основан на следующих принципах.

1. Возбуждение проводится в смеси с естественным содержанием изотопов в потоке атомов с инертным буферным газом. Время дрейфа через область взаимодействия атомов с лазерным излучением составляет порядка 1 с, число столкновений с атомами буферного газа доходит до  $10^7$ . Такое большое вре-

мя взаимодействия атомов с лазерным излучением и большое число столкновений позволяют использовать слабые линии поглощения и слабые компоненты сверхтонкой структуры (населенности успевают перемешиваться за время дрейфа) нечетных изотопов, что позволяет осуществлять 100%-ные возбуждение нужного изотопа за время дрейфа.

2. Необходима быстрая химическая реакция возбужденных атомов с молекулами газа-реагента. Продукты подобной реакции должны осаждаться (“выжигаться”) на стенках в камере разделения. Для эффективного “выжигания” должны выполняться условия

$$k^*n\tau > 1, \quad kn\tau \ll 1, \quad (1)$$

где  $k^*$ ,  $k$  – константы скорости реакции для возбужденных и невозбужденных атомов,  $n$  – концентрация газа-реагента,  $\tau$  – время жизни возбужденного состояния.

3. Осуществляется однофотонный способ возбуждения изотопов. Предпочтительными оказываются переходы с малыми значениями сил осцилляторов. В этом случае реализуется большое время жизни возбужденного состояния, следовательно, легко выполнить условие (1). Кроме того, для элементов, у которых изотопные сдвиги скрыты доплеровским уширением, используется метод селективного по скоростям атомов возбуждения неоднородно уширенных контуров поглощения под действием узкополосного лазерного излучения [4]. В этом случае со световым полем взаимодействуют только атомы, имеющие определенную проекцию скорости  $v$  в направлении распространения волны:

$$|\nu_0 - \nu + \nu_0 v/c| \leq \gamma, \quad \Delta\nu, \quad (2)$$

где  $\nu_0$  – центральная частота линии поглощения атома,  $\nu$  и  $\Delta\nu$  – частота и ширина линии излучения,  $\gamma$  –

<sup>1)</sup>e-mail: fateev@isp.nsc.ru

однородная ширина линии поглощения атома. В случае, когда доплеровское уширение гораздо больше однородного, частотная зависимость коэффициента поглощения  $\alpha$  имеет вид [4]

$$\alpha = \alpha_0 \exp[-4 \ln 2 ((\nu - \nu_0)/\Delta\nu_d)^2], \quad (3)$$

где  $\alpha_0$  – коэффициент поглощения в центре линии,  $\Delta\nu_d$  – доплеровская ширина линии.

Когда атомы состоят из смеси изотопов, то суммарный контур линии поглощения состоит из суммы коэффициентов (3) с соответствующими величинами  $\nu_0$  и весами, пропорциональными их процентному содержанию. Если частота лазерного излучения отстроена на край линии поглощения изотопа, вклад в поглощение других изотопов оказывается малым. При этом существенно падает и суммарный коэффициент поглощения, однако большое время взаимодействия лазерного излучения с атомами обеспечивает 100%-ную эффективность возбуждения атомов нужного изотопа при соответствующем выборе экспериментальных параметров.

В эксперименте область разделения представляла собой нагреваемую внешней печью кварцевую трубку для Zn и стеклянную для Rb длиной 60 см, диаметром 3 см, через которую распространялся газовый поток исследуемых атомов с аргоном и молекулами газа-реагента. Скорость прокачки смеси  $\geq 0.5$  л/с, давление аргона (1 ÷ 2) торр, концентрация газа-реагента  $\approx 10^{16}$  см $^{-3}$ . Атомы исследуемого изотопа поступали в область разделения из резервуара, который нагревался отдельной печью, с температурой, обеспечивающей необходимую концентрацию атомов в области разделения. Анализ изотопного состава для Zn осуществлялся в коллекторной камере, куда поступал поток смеси, находящейся при комнатной температуре, с помощью пробного излучения, либо масс-спектрометрическим анализом осаждаемых в этой области атомов. Для анализа изотопного состава атомов Rb использовалось зондирование излучением полупроводникового лазера ( $\Delta\nu = 80$  МГц,  $\lambda = 780$  нм) на переходе  $5S_{1/2} - 5P_{3/2}$  ( $D_2$ -линия), в конце области разделения в поперечном направлении к потоку атомов.

Возбуждение атомов Zn с помощью силового лазера осуществлялось в области разделения вдоль потока на интеркомбинационном переходе  $4s^2\ ^1S_0 - 4p\ ^3P_1^0$  ( $\lambda = 307$  нм) и атомов Rb в ридберговское состояние  $11P_{3/2}$  ( $\lambda = 311$  нм) от источника узкополосного перестраиваемого импульсного излучения, описанного в [5]. Средняя мощность лазерного излучения составляла  $\sim 2$  Вт, диаметр пучка  $\sim 1$  см при частоте повторения  $f = 12$  кГц, длительности импульса 10 нс,

ширине линии излучения  $\Delta\nu = 45$  МГц. В данном варианте схем возбуждения верхние возбужденные состояния имеют относительно большое время жизни, для Zn  $\tau = 10.5$  мкс и для Rb  $\tau = 0.55$  мкс. Эти значения получены в реальных экспериментальных условиях по измерению времени спада сигнала люминесценции с возбужденных уровней в отсутствие газа-реагента в области разделения.

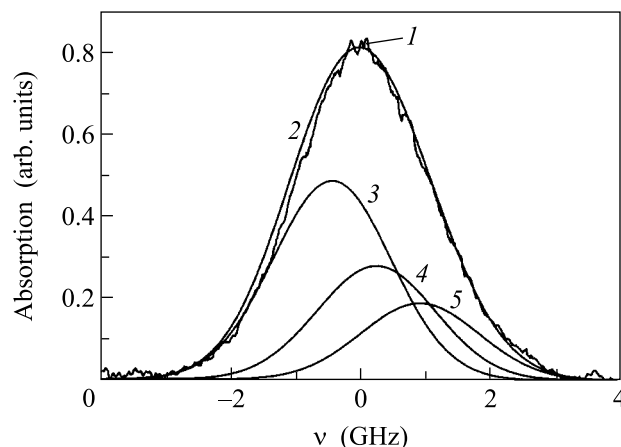


Рис.1. Спектр поглощения лазерного излучения атомами Zn в газовом потоке на переходе  $4s^2\ ^1S_0 \rightarrow 4p\ ^3P_1^0$  ( $\lambda = 307$  нм): 1 – экспериментальный спектр при 350 С; 2 – расчетный спектр по формуле (3) при той же температуре; 3, 4, 5 – расчетные спектры только для одного изотопа 64, 66, 68, соответственно

На рис.1 приведены экспериментальный и расчетные спектры поглощения (3) на резонансном переходе атома Zn  $4s^2\ ^1S_0 \rightarrow 4p\ ^3P_1^0$  при температуре  $T = 350$  С для основных изотопов атомов Zn, а также суммарный контур поглощения. Как видно из рисунка, изотопные сдвиги гораздо меньше доплеровской ширины. Если частота монохроматического излучения с  $\Delta\nu \ll \Delta\nu_d$  отстроена от центра доплеровского контура поглощения атомов цинка, то коэффициенты поглощения для различных изотопов различны. Можно подобрать частоту излучения, при которой возбуждается преимущественно только один изотоп. На рис.2 приведены спектры поглощения атомов Rb в камере разделения на переходе ( $5S_{1/2} - 11P_{3/2}$ ), записанные по поглощению излучения и по сигналу люминесценции. В обоих случаях они были идентичны. Характер поведения спектров не изменялся вплоть до давления Ar  $\sim 5$  торр и концентрации атомов Rb  $\sim 10^{13}$  см $^{-3}$ . Видно хорошее совпадение расчетных спектров поглощения с экспериментальными (3) при рабочей температуре 120 С. На этом же рисунке приведены расчетные значения поглощения для

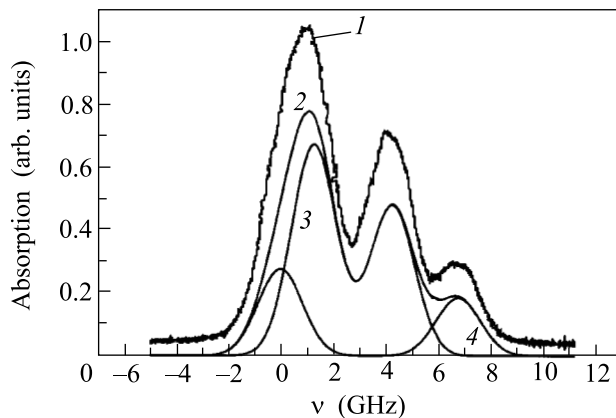
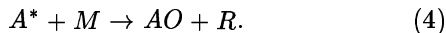


Рис.2. Спектр поглощения лазерного излучения атомами рубидия в газовом потоке на переходе  $5S_{1/2} - 11P_{3/2}$  ( $\lambda = 311$  нм): 1 – экспериментальный спектр при 120 С; 2 – расчетный спектр при той же температуре; 3, 4 – расчетные спектры только для одного изотопа  $^{85}\text{Rb}$ ,  $^{87}\text{Rb}$ , соответственно

отдельных компонент сверхтонкой структуры изотопов  $^{85}\text{Rb}$ ,  $^{87}\text{Rb}$ . Использование для возбуждения двух последних компонент сверхтонкой структуры ( $F = 1 \rightarrow F = 0, 1, 2$  для  $^{87}\text{Rb}$  и ( $F = 2 \rightarrow F = 1, 2, 3$  для  $^{85}\text{Rb}$ ) дает хорошую селективность возбуждения выбранного изотопа.

Для выбора газа-реагента были проведены исследования с различными молекулами. Ранее (см., например, [6–8]) были изучены реакции многих возбужденных атомов с различными углеводородами. Однако продуктами этих реакций являются нестабильные соединения, которые распадаются за сотни микросекунд [6]. Для нашей цели были выбраны сложные кислородсодержащие молекулы: диэтилового эфира –  $(\text{C}_2\text{H}_5)_2\text{O}$  и метанола –  $\text{CH}_3\text{OH}$ . В этом случае реакция возбужденных атомов с молекулами газа-реагента идет с образованием устойчивого соединения  $\text{ZnO}$ , которое осаждается на стенках камеры области разделения, то есть реакция идет по схеме



Из измерений временного спада сигнала люминесценции при различных давлениях газа-реагента определена константа скорости реакции  $\text{Zn}(4p^3P_1^0)$  с диэтиловым эфиром:  $k^* = 1.61 \cdot 10^{-9} \text{ см}^3/\text{с}$  при  $k < 10^{-14} \text{ см}^3/\text{с}$ , для  $\text{Rb}(11P_{3/2})$  с молекулами метанола:  $k^* = 1.47 \cdot 10^{-9} \text{ см}^3/\text{с}$  и диэтилового эфира:  $k^* = 8.4 \cdot 10^{-10} \text{ см}^3/\text{с}$ . Для  $\text{Rb}$  значение  $k$  более чем на 3 порядка меньше  $k^*$ .

Когда частота излучения силового лазера настроена на центр доплеровского контура атомов  $\text{Zn}$ , регистрируется практически 100%-ное “выжигание”

атомов в коллекторной камере. Этот факт свидетельствует об эффективном возбуждении атомов  $\text{Zn}$  в камере разделения и эффективности химической реакции. При отстройке частоты излучения лазера от центра доплеровского контура наблюдается деформация контура линии поглощения, регистрируемая в коллекторной камере. На рис.3 приведены результаты этих экспериментов, полученные при concentra-

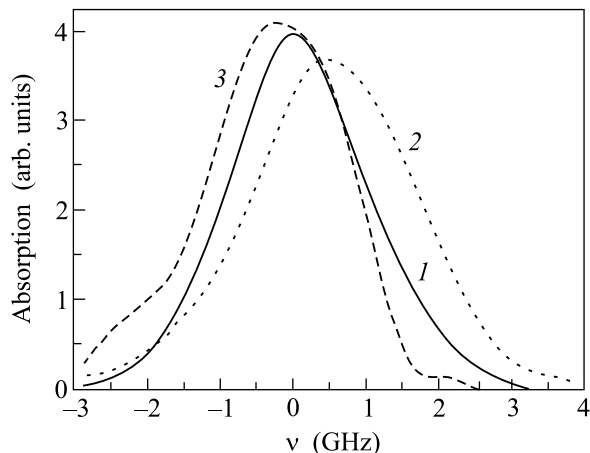


Рис.3. Спектр поглощения пробного лазерного излучения атомами  $\text{Zn}$  в коллекторной камере на переходе  $4s^2\ ^1S_0 \rightarrow 4p^3\ ^1P_1^0$  ( $\lambda = 307$  нм): 1 – спектр поглощения без излучения силового лазера в области разделения, 2 – в присутствии силового излучения с частотой, настроенной на (–) 2 ГГц относительно центра линии поглощения (значения умножены на 8); 3 – частота излучения силового лазера настроена на (+) 2 ГГц относительно центра (значения умножены на 20)

ции атомов  $\approx 10^{13} \text{ см}^{-3}$  в области разделения. Когда частота лазера отстроена от центра на (–) 2 ГГц, максимум доплеровского контура смещается вправо. Это связано с преимущественным возбуждением и последующим “выжиганием”  $^{64}\text{Zn}$  (см. рис.1). Противоположная ситуация возникает, когда частота излучения отстроена на (+) 2 ГГц. Из рис.3 также следует, что число “выжигаемых” атомов, регистрируемое в коллекторной камере, превышает число возбуждаемых атомов в камере разделения. Это связано, по видимому, с вторичными реакциями образуемых радикалов с невозбужденными атомами. Сопоставление сдвига максимума доплеровского контура с расчетным показало, что более 95% изотопа  $^{64}\text{Zn}$  “выжигается” в камере разделения. Такие же результаты получены из масс-спектрометрического анализа  $\text{Zn}$ , оседающего на стенках коллекторной камеры. Достигнутая наработка продукта составила  $\sim 1$  г вещества при 3-х часовой экспозиции.

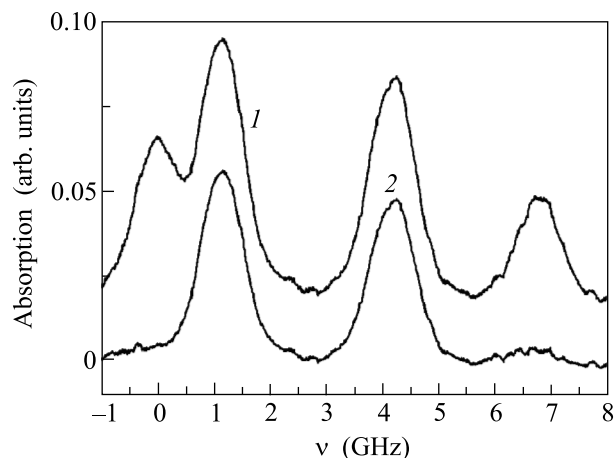


Рис.4. Спектр поглощения резонансного излучения атомами Rb в конце области разделения на переходе  $5S_{1/2} - 5P_{3/2}$  ( $\lambda = 780$  нм): 1 – без излучения силового лазера в области разделения; 2 – в присутствии излучения силового лазера, настроенного на частоту перехода компонент сверхтонкой структуры  $^{87}\text{Rb}$

На рис.4 приведены спектры поглощения атомов Rb при концентрации  $\approx 10^{12}$  см $^{-3}$  на переходе  $5S_{1/2} - 5P_{3/2}$ , регистрируемые в конце камеры разделения. На основе этих спектров можно судить об изотопическом составе атомов Rb. Экспериментальные результаты (рис.4) показывают, что когда частота возбуждающего излучения настроена на четвертый пик поглощения ( $F = 1 \rightarrow F = 0, 1, 2$ ) изотопа  $^{87}\text{Rb}$  (рис.2), в конце камеры разделения содержание это-

го изотопа уменьшается до уровня менее чем  $\sim 10\%$  от первоначальной величины.

Таким образом, экспериментально продемонстрирован новый способ разделения изотопов, основанный на “выжигании” селективно возбужденных атомов в потоке атомов аргона и газа-реагента. Основное его преимущество перед ранее используемым состоит в однофотонном методе возбуждения и высокой концентрации разделяемых изотопов в камере разделения.

Авторы выражают благодарность А. Ю. Степанову, В. А. Киму, В. А. Кочубею и Н. А. Юдину за помощь в работе.

1. В. С. Летохов, *Нелинейные селективные фотопроецессы в атомах и молекулах*, М.: Наука, 1983.
2. P. Campbell, J. Billowes, and I. S. Grant, *J. Phys. B: At. Mol. Opt. Phys.* **30**, 2351 (1997).
3. П. А. Бохан, В. В. Бучанов, Д. Э. Закревский и др., *Письма в ЖЭТФ* **71**, 705 (2000).
4. В. С. Летохов, В. П. Чеботаев, *Нелинейная лазерная спектроскопия сверхвысокого разрешения*, М.: Наука, 1990.
5. П. А. Бохан, Д. Э. Закревский, С. А. Кочубей и др., *Квантовая электроника* **31**, 132 (2001).
6. W. H. Breckenridge, T. W. Broadbent, and D. S. Moore, *J. Phys. Chem.* **79**, 1233 (1975).
7. H. Umamoto, S. Tsunashima, H. Ikeda et al., *J. Chem. Phys.* **101**, 4803 (1994).
8. Li-H. Fan, J-J. Chen, Y-Y. Lin et al., *J. Phys. Chem. A* **103**, 1300 (1999).