

**П И С Ь М А**  
**В ЖУРНАЛ ЭКСПЕРИМЕНТАЛЬНОЙ**  
**И ТЕОРЕТИЧЕСКОЙ ФИЗИКИ**

ОСНОВАН В 1965 ГОДУ  
 ВЫХОДИТ 24 РАЗА В ГОД

ТОМ 71, ВЫПУСК 12  
 25 ИЮНЯ, 2000

Письма в ЖЭТФ, том 71, вып.12, стр.705 - 709

© 2000г. 25 июня

**ВЫСОКОЭФФЕКТИВНОЕ РАЗДЕЛЕНИЕ ИЗОТОПОВ Zn В**  
**ФОТОХИМИЧЕСКОЙ РЕАКЦИИ С ИСПОЛЬЗОВАНИЕМ**  
**ДВУХФОТОННОГО ВОЗБУЖДЕНИЯ**

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

Институт физики полупроводников Сибирского отделения РАН  
 630090 Новосибирск, Россия

Поступила в редакцию 21 апреля 2000 г.

На примере атома цинка реализовано высокоэффективное лазерное разделение изотопов для случая, когда изотопные сдвиги в атоме значительно меньше доплеровской ширины. Возбуждение атомов осуществлялось за счет двухфотонного поглощения двух встречных волн с малой отстройкой от промежуточного состояния, благодаря чему возбуждаются все “нужные атомы”. Разделение происходит в результате фотохимической реакции селективно возбужденного изотопа цинка с молекулой CO<sub>2</sub>, скорость которой на 3 ÷ 5 порядков больше, чем для невозбужденных атомов. Теоретически и экспериментально рассмотрены механизмы уширения линий двухфотонного резонанса и оценены возможности исследованного метода для получения весовых количеств изотопов.

PACS: 42.62.Fi

Лазерное разделение изотопов элементов, находящихся в середине таблицы Менделеева, вызывает затруднения из-за малой величины изотопического расщепления. Дополнительным препятствием является отсутствие низколежащих автоионизационных состояний с большим сечением поглощения. В данной работе на примере атома цинка осуществлено высокоэффективное разделение изотопов с использованием фотохимической реакции при двухфотонной накачке возбужденных состояний, что позволило преодолеть эти затруднения.

Схема нижних уровней атома цинка приведена на рис.1. Согласно литературным данным [1, 2], изотопический сдвиг резонансных линий между четными изотопами главным образом вызван изотопическим расщеплением основного состояния. Для интеркомбинационного перехода  $4s^2\ ^1S_0 - 4p^3\ ^1P_1^0$  с  $\lambda = 0.307$  мкм это расщепление между двумя соседними изотопами составляет 660 МГц, что втрое меньше доплеровской полуширины. В результате вся изотопическая структура перехода находится

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

внутри доплеровского контура, что затрудняет лазерное разделение изотопов способами AVLIS [3].

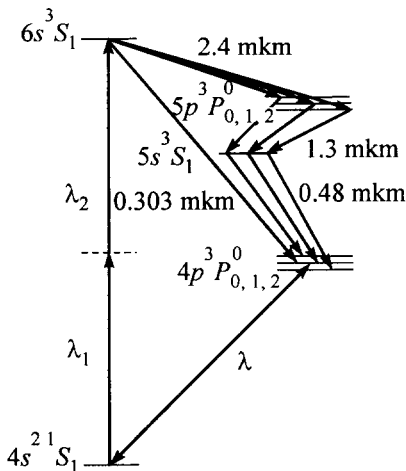
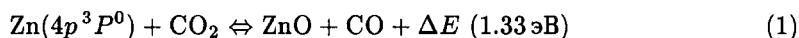


Рис.1. Схема рабочих уровней и переходов в атоме цинка

Для разделения изотопов нами использовалась фотохимическая реакция цинка в долгоживущем ( $\tau \approx 10$  мкс) состоянии  $4p^3 P^0$  с молекулой  $CO_2$ :



Изотопически селективное возбуждение атомов осуществлялось в состоянии  $6s^3 S_1$  при поглощении двух встречных фотонов ( $\lambda_1 = 307.6$  нм и  $\lambda_2 = 303.6$  нм) с круговой поляризацией (рис.1). Близость энергии этих фотонов при двухфотонном процессе [4] обеспечивает устранение доплеровского уширения до величины менее 20 МГц, что существенно меньше изотопных сдвигов. Состояние  $6s^3 S_1$  затем распадается в  $4p^3 P^0$  в цепочке спонтанных и вынужденных переходов как через промежуточные уровни  $5p^3 P^0_{0,1,2}$  и  $5s^3 S_1$ , так и напрямую (рис.1). Интеркомбинационные переходы между системами синглетных и триплетных уровней атома Zn очень слабы, поэтому после двухфотонного возбуждения благодаря быстрым процессам (за времена менее 30 нс) все атомы оказываются в состоянии  $4p^3 P^0$ . Для предотвращения изотопически неселективного прямого возбуждения атомов Zn в однофотонном процессе накачки по первому интеркомбинационному переходу частота излучения лазера отстраивалась от точного резонанса на  $4 \div 5$  доплеровских полуширин.

Исследования проводились на лазерной установке, содержащей две одинаковые системы, состоящие из задающего генератора и трех усилительных каскадов на красителе феналемин-512, накачиваемых излучением лазера на парах меди со средней выходной мощностью 130 Вт, частотой следования импульсов 12 кГц. Для получения узкополосного излучения в качестве задающего генератора использовался непрерывный лазер на красителе родамин-6Ж, накачиваемый излучением  $Ag^+$ -лазера. Полуширина линии излучения задающего генератора составляла менее 5 МГц. Средняя выходная мощность каждого лазера составляла 10 Вт, с полушириной линии излучения, ограниченной снизу длительностью импульса излучения Cu-лазера ( $\approx 15$  нс). Ультрафиолетовое излучение на длинах волн  $\lambda_1 = 307.6$  нм и  $\lambda_2 = 303.6$  нм со средней выходной мощностью более 2 Вт получено удвоением излучения лазеров на красителе в кристалле ВВО.

Разделение изотопов проводилось в нагреваемой ячейке, через которую прокачивался углекислый газ. Протекание реакции (1) контролировалось по появлению окиси углерода в масс-спектре выходной смеси. Измерялись константа скорости фоновой реакции, то есть атомов Zn в основном состоянии с молекулой CO<sub>2</sub>, и константа скорости реакции (1). Константа скорости фоновой реакции в диапазоне температур 600 ÷ 800 К с точностью не хуже 20% описывается формулой

$$K(\text{см}^3/\text{с}) = 7.9 \cdot 10^{-8} \exp(-10886/T), \quad T(\text{К}). \quad (2)$$

Константа скорости реакции (1) в возбужденном состоянии, которая контролировалась как по скорости наработки CO, так и по сокращению времени жизни уровня  $4p^3P_1^0$ , в пределах ошибки измерений не зависит от температуры и равна  $k_2 = 2.5 \cdot 10^{-10} \text{см}^3/\text{с}$ , что на 3 ÷ 5 порядков (в зависимости от температуры) выше скорости фоновой реакции. При давлении CO<sub>2</sub> 15 Па скорость реакции (1) на порядок величины превышает вероятность спонтанного распада состояния  $4p^3P_1^0$ . Последняя, по нашим измерениям, равна  $A_c = 10^5 \text{с}^{-1}$ . Квантовая эффективность реакции превышает 50%.

Процесс разделения изотопов контролировался как по измерению скорости наработки CO в реакции (1), так и по появлению оптического сигнала на длине волны 1.3 мкм в процессе вынужденных переходов (генерация сверхизлучения) (рис.1). Эти методики дают идентичные спектры продуктов по реакции (1). Однако для электронной привязки к резонансам линий поглощения, исключающей медленный дрейф частоты излучения лазеров в процессе наработки нужного изотопа, второй сигнал использовать предпочтительнее из-за гораздо большего быстродействия.

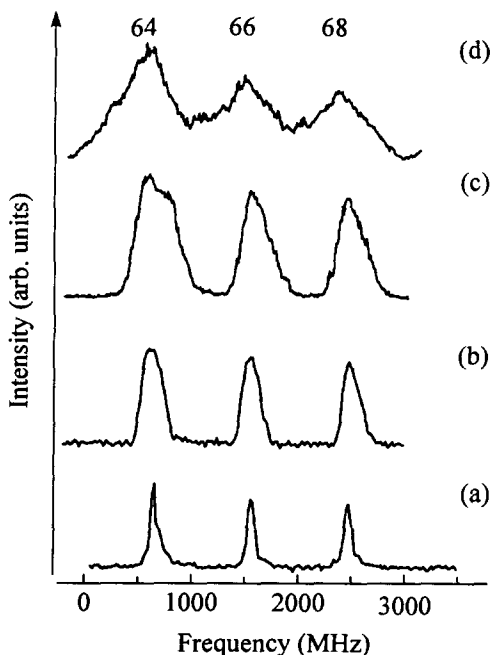


Рис.2. Спектр люминесценции на длине волны 1.3 мкм в зависимости от  $\lambda_2$ : а)  $E_1, E_2 = 150 \text{мкДж} \cdot \text{см}^{-2}$ ,  $n = 8 \cdot 10^{-14} \text{см}^{-3}$ ; б)  $E_1, E_2 = 150 \text{мкДж} \cdot \text{см}^{-2}$ ,  $n = 3 \cdot 10^{-13} \text{см}^{-3}$ ; в)  $E_1, E_2 = 400 \text{мкДж} \cdot \text{см}^{-2}$ ,  $n = 3 \cdot 10^{-13} \text{см}^{-3}$ ; д)  $E_1, E_2 = 550 \text{мкДж} \cdot \text{см}^{-2}$ ,  $n = 3 \cdot 10^{-13} \text{см}^{-3}$

На рис.2 приведены записи сигналов люминесценции, демонстрирующие разделение изотопов Zn. При малой концентрации атомов (спектр а) и сравнительно неболь-

шой мощности лазеров получается полностью разрешенная изотопическая структура. Предельная ширина спектра отдельного изотопа составляет 70 МГц и обусловлена как конечной шириной линии излучения лазеров, так и неравенством энергии квантов при двухфотонном поглощении. Асимметрия резонансов как раз обусловлена этой причиной. При большой концентрации атомов Zn (спектр b) или высокой плотности излучения (спектр c) линии двухфотонного резонанса сильно уширены и могут быть полностью перекрыты (запись d).

С целью теоретической интерпретации результатов экспериментов и оценки разделительной способности метода было проведено численное моделирование динамики населенностей уровней. Радиационные времена жизни рабочих уровней оказались больше, чем длительности импульсов излучения лазеров (5–15 нс). Поэтому для корректных оценок необходимо рассмотрение процессов в приближении когерентного взаимодействия излучения с веществом. Для этой цели была разработана компьютерная программа расчета динамики элементов матрицы плотности в трехуровневой схеме в соответствии с математической моделью, изложенной в [5]. Модель была дополнена учетом вынужденных переходов с верхнего уровня за счет сверхизлучения. Учитывалось доплеровское распределение атомов по скоростям. Для расчета использовался метод Рунге – Кутты четвертого порядка точности.

На рис.3 представлен пример расчета спектральной зависимости степени возбуждения атомов изотопа цинка. В отсутствие сверхизлучения достигается достаточная высокая степень возбуждения атомов изотопа на уровне 0.6 при ширине линии около 70 МГц. Однако двухфотонное возбуждение неизбежно приводит к инверсии населенностей и появлению сверхизлучения между верхним уровнем и уровнями триплета  $5p^3P_{0,1,2}^0$ . Контур линии сверхизлучения охватывает весь доплеровский контур, поэтому ее ширина оказывается много большей, чем обратное время длительности импульсов. Вынужденные переходы приводят к сбою фазы поляризаций в двухфотонном процессе, что также приводит к уширению линий поглощения (рис.2d).

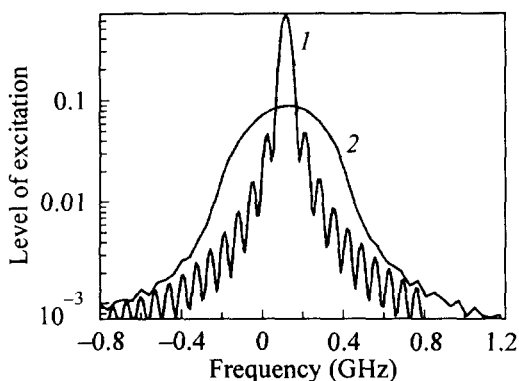


Рис.3. Частотная зависимость степени возбуждения: 1 – без учета сверхизлучения, 2 – с учетом сверхизлучения. Энергия импульсов излучения 350 мкДж/см<sup>2</sup>, отстройка 7 ГГц, концентрация изотопа  $2 \cdot 10^{13}$  см<sup>-3</sup>

Результаты расчетов, в соответствии с экспериментальными данными показали, что имеет место эффект увеличения ширины линии поглощения с возрастанием концентрации атомов изотопа или интенсивности излучения. Этот эффект может быть объяснен тем, что с их ростом увеличивается доля поглощенного излучения, что приводит к более высокой мощности сверхизлучения и, как следствие, к увеличению частоты вынужденных переходов. В результате возрастает ширина линии поглощения, что приводит к уменьшению селективности выделения изотопа. При

заданной селективности разделения изотопов описанный эффект накладывает ограничение сверху на мощность лазеров и концентрацию атомов выделяемого изотопа. Эффективность процесса разделения изотопов определяется долей излучения, поглощенного в процессе двухфотонной накачки. Следует отметить, что при двухфотонном поглощении двух встречных фотонов в процессе поглощения монохроматического излучения участвуют все "нужные" атомы. Селективность процесса разделения определяется степенью перекрытия линий двухфотонного резонанса. Степень перекрытия зависит от отстройки частоты, энергии излучения и концентрации атомов. Требования по эффективности и селективности противоречат друг другу, поэтому для каждой отдельной задачи нужен выбор оптимального компромисса между удельной производительностью, эффективностью и селективностью процесса разделения. Например, при селективности  $50 \div 100$  плотность энергии излучения  $E_1$  и  $E_2$  не должна превышать  $350 \text{ мДж} \cdot \text{см}^{-2}$ , а концентрация атомов цинка должна быть не выше  $n = 2 \cdot 10^{13} \text{ см}^{-3}$ . В этих условиях достигается эквивалентный коэффициент поглощения для изотопа  $\text{Zn}^{66}$   $k_\nu \sim (3 \div 4) \cdot 10^{-3} \text{ см}^{-1}$ , что позволяет эффективно использовать излучение накачки при умеренной длине кюветы  $150 \div 200 \text{ см}$ . Производительность комплекса для этого случая составляет  $0.6 \text{ г/ч}$ .

Таким образом, показано, что использование двухфотонной накачки в сочетании с фотохимической реакцией позволяет проводить эффективное разделение изотопов для случая, когда резонансные переходы всех разделяемых изотопов находятся внутри доплеровского контура. Проведено разделение изотопов цинка с производительностью  $0.6 \text{ г/ч}$ .

Авторы выражают благодарность за помощь в работе Г.Г.Рахимову.

- 
1. G.F.Hately and T.A.Littlefield, J. of Optical Society America **48**, 851 (1958).
  2. P.Campbell, J.Billowes, and I.S.Grant, J. Phys. B: At. Mol. Opt. Phys. **30**, 2351 (1997).
  3. J.A.Paisner, App. Phys. **B46**, 253 (1988).
  4. Л.С.Василенко, В.П.Чеботаев, А.В.Шишаев, Письма в ЖЭТФ **12**, 161 (1976).
  5. С.К.Борисов, М.А.Кузьмина, В.А.Мишин, Квантовая электроника **25**, 695 (1995).