

Об использовании эффекта Зеемана

Для повышения селективности лазерного разделения изотопов

А.Н.Ткачев, С.И.Яковленко

Предложено использовать эффект Зеемана для повышения селективности схем лазерного разделения изотопов. На основе имеющихся спектроскопических данных показано, что применение эффекта Зеемана позволяет существенно увеличить селективность схемы лазерного выделения изотопа ^{102}Pd .

Ключевые слова: эффект Зеемана, разделение изотопов, вероятность квантовых переходов.

1. Введение

В задачах лазерного разделения изотопов (ЛРИ) можно выделить два направления исследований. Первое направление ориентировано на получение больших весовых количеств не очень сильно обогащенного изотопа. Например, при производстве топлива для энергетических ядерных реакторов необходимо достичь 2% – 4%-ного содержания ^{235}U при его содержании в естественной смеси 0.7%. Второе направление ориентировано на получение небольших количеств (порядка нескольких граммов) высокообогащенных изотопов для медицины. Например, для медицинских применений требуется изотоп ^{168}Yb с содержанием не менее 20% – 25%, в то время как его содержание в естественной смеси изотопов составляет всего лишь 0.14%.

Теоретические и экспериментальные исследования, проведенные за последние годы в России (в ИОФ РАН и НПФ ЛАД) значительно активизировали работы во втором направлении и привели к созданию первых в мире установок, способных производить коммерчески выгодный обогащенный изотоп ^{168}Yb методом селективной фотоионизации (см. обзоры [1 – 3]). Естественно рассмотреть возможности ЛРИ для других редких изотопов, используя опыт этих работ.

При обеспечении высокой селективности схемы ступенчатой фотоионизации редкого изотопа мешающим фактором часто является спектральное наложение линий различных изотопов (блендирование), возникающее из-за сверхтонкого расщепления линий изотопов с отличиями от нуля моментами ядер. В этом случае можно пытаться использовать эффект Зеемана для сдвига блендирующихся линий за пределы спектральной ширины линии лазерного излучения и доплеровской ширины атомных линий. Ниже такая возможность рассматривается на конкретном примере изотопа ^{102}Pd . При этом активно используются данные работы [4] по изотопической и сверхтонкой структуре промежуточного состояния $4d^9 5p^3 P_1$ атома Pd.

2. Спектроскопические характеристики Pd

2.1. О выборе схемы селективной фотоионизации ^{102}Pd

Основным состоянием палладия является состояние $4d^{10} 1S_0$ ($E = 0$). Ближайшими к нему являются метастабильные состояния с конфигурацией $4d^9 5s: 3D_3$ ($E = 6564$) см^{-1} , $3D_2$ (7755 см^{-1}), $3D_1$ (10094 см^{-1}) и $1D_2$ (11722 см^{-1}) (дипольные переходы из них в основное состояние запрещены по четности). При температуре источника паров до 2000 К (резистивное испарение) населенности метастабильных состояний малы (более 90% атомов находится в состоянии $1S_0$), поэтому исходным состоянием для схемы фотоионизации должно быть основное состояние палладия $1S_0$.

Отметим, что использовать при ионизации квадрупольные переходы из основного состояния в возбужденные вряд ли удастся, поскольку вероятности таких переходов слишком малы. Так, например, для перехода из основного состояния в состояние $4d^9 5s 1D_2$ оценка по таблицам Бейтса – Дамгаард дает вероятность перехода $A \sim 0.05$ с^{-1} , поэтому для фотовозбуждения атомов палладия приходится использовать дипольные переходы.

Ближайшими к основному состоянию уровнями, на которые возможен дипольный переход, являются уровни с конфигурацией $4d^9 5p: 3P_1$ ($E = 36180.64$ см^{-1} , $\lambda = 276.4$ нм), $1P_1$ (40838.8 см^{-1} , 244.9 нм) и $3D_1$ (40368.73 см^{-1} , 247.7 нм) (данные по энергиям уровней см. в [5]). Лазером на красителе с удвоением частоты и накачкой от медного лазера можно возбудить только уровень $3P_1$, использующийся в качестве первого рабочего уровня схемы ступенчатой ионизации в работе [4].

Дальнейшее возбуждение возможно в двух вариантах (рис. 1). В первом из них ионизацию возбужденных атомов палладия из состояния $4d^9 5p^3 P_1$ можно осуществлять далее либо напрямую в континуум излучением с $\lambda < 322$ нм, либо через автоионизационные состояния с конфигурацией $4d^9 nl$ [6]. Параметры этих схем фотоионизации определяются характеристиками уровня $3P_1$, время жизни которого составляет 7.5 нс [7]. Малое время жизни накладывает ограничение снизу на импульсную мощность ионизирующего излучения (поскольку скорость ионизации должна быть выше скорости спонтанных

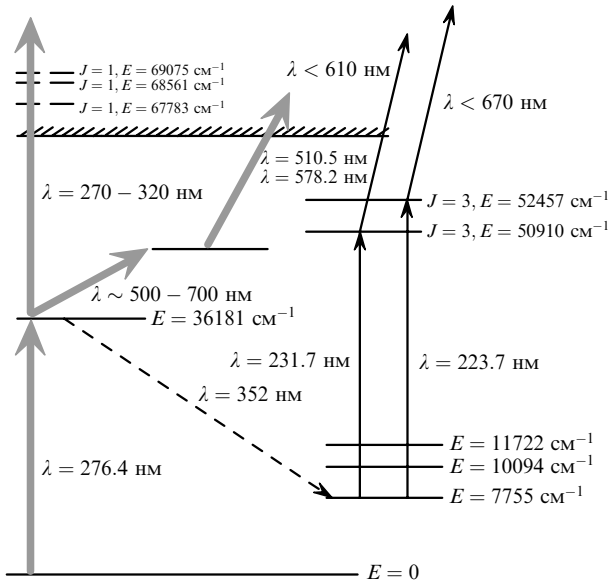


Рис.1. Схемы фотоионизации Pd.

распадов) и синхронизацию импульсов возбуждающего и ионизирующего излучения (погрешность не хуже 3 нс). Селективность схемы определяется изотопической структурой перехода $^1S_0 - ^3P_1$.

Во втором варианте можно использовать тот факт, что распады из состояния $4d^9 5p^3 P_1$ идут, в основном, в метастабильное состояние с конфигурацией $4d^9 5s^3 D_2$ (около 80 % распадов). Поэтому можно путем облучения паров на длине волны перехода $^1S_0 - ^3P_1$ накопить в указанном состоянии достаточное число атомов, а затем использовать его в качестве нижнего уровня схемы. Селективность здесь будет определяться произведением селективности фотоионизации на переходе $^1S_0 - ^3P_1$, используемом для загрузки уровня 3D_2 , и селективности первого рабочего перехода схемы. Первым рабочим переходом при использовании второй гармоники лазера на красителе с накачкой лазером на парах меди в этой схеме могут служить переходы на следующие уровни с конфигурацией $4d^9 5p: ^3P_2$ ($2\lambda = 760.05$ нм), 3P_1 (703.59), 3F_3 (722.12), 3F_2 (643.98), 3D_3 (674.79), 3D_2 (684.44), 3D_1 (613.24), 1F_3 (622.99), 1D_2 (605.76) и 1P_1 (604.53).

Ниже рассматривается первый вариант – двухступенчатая фотоионизация через состояние $4d^9 5p^3 P_1$.

2.2. Изотопический сдвиг и сверхтонкая структура уровней

Для нахождения изотопической структуры уровня необходимы одновременно данные как об изотопических сдвигах, так и о сверхтонкой структуре (СТС). Далее при обсуждении изотопической структуры уровней энергии за нуль отчета энергии атомного уровня мы примем основное состояние, т. е. будем полагать, что основные состояния всех изотопов совмещены по энергии (традиционно считается, что совмещены границы ионизации, но это для наших целей неудобно). Энергетические сдвиги будем измерять в мК ($1 \text{ мК} = 10^{-3} \text{ см}^{-1} = 29.979 \text{ МГц}$).

Поправки к энергии уровней за счет взаимодействия с магнитными и квадрупольными моментами ядер (СТС уровней) с высокой точностью описываются следующей из теории атомных спектров формулой

$$\Delta E(I, J, F) = \frac{1}{2} A(I, J) C + \frac{3}{8} B(I, J) \times \frac{C(C+1)}{I(2I-1)J(2J-1)} + \Delta(I, J), \quad (1)$$

где $C = F(F+1) - J(J+1) - I(I+1)$; I – момент ядра; J – момент атомного состояния (состояния электронной оболочки ядра); F – полный момент атома; $A(I, J)$ и $B(I, J)$ – некоторые константы.

Первый член формулы (1) (константа A) связан с расщеплением термина с заданным J за счет взаимодействия с магнитным моментом ядра (пропорциональным I), второй член связан с расщеплением за счет взаимодействия с квадрупольным электрическим моментом ядра. Сдвиг $\Delta(I, J)$ не зависит от полного момента атома F и одинаков для всех подуровней СТС уровня с заданным J . Как правило, в литературе по СТС приводятся не сами измеренные сдвиги уровней СТС с различными F , а значения констант A и B , при которых наблюдается наилучшее согласие измеренных сдвигов с формулой (1).

Конкретные данные по изотопическим сдвигам на переходе $4d^9 5p^3 P_1 \rightarrow 4d^{10} ^1 S_0$ в литературе отсутствуют. В [4] имеется лишь рисунок изотопической структуры этого перехода без указания ссылок на данные, по которым он построен. Рисунок был оцифрован и полученные сдвиги (они примерно соответствуют сдвигам для других переходов, измеренным в [8–10]) использованы при построении рис.2 настоящей работы. СТС уровня $4d^9 5p^3 P_1$ в изотопе ^{105}Pd была определена в [7, 10]. Результаты измерений констант A и B в этих статьях практически совпадают. Для построения рис.2 были использованы более свежие данные работы [10]: $A = -130 \text{ МГц}$, $B = 140 \text{ МГц}$.

Для расчета СТС уровня $4d^9 5s^3 D_2$ были взяты наиболее точные из имеющихся констант: $A = 66 \text{ МГц}$ и $B = -400 \text{ МГц}$ [9]. Изотопические сдвиги для указанного уровня в литературе отсутствуют. Для восстановления сдвигов была использована информация об изотопических сдвигах уровня $4d^9 5p^3 P_1$ (рис.4) и данные статьи [8] об изотопических сдвигах в линиях с $\lambda = 340.5$ и 357.1 нм (переходы между уровнями, наиболее близкими из измеренных к нужным уровням 3P_1 и 3D_2 по энергии). Полученная в результате изотопическая структура представлена на рис.3.

2.3. Вероятности радиационных переходов

Публикаций по вероятностям переходов в Pd I, так же как и по изотопической структуре уровней, немного. В

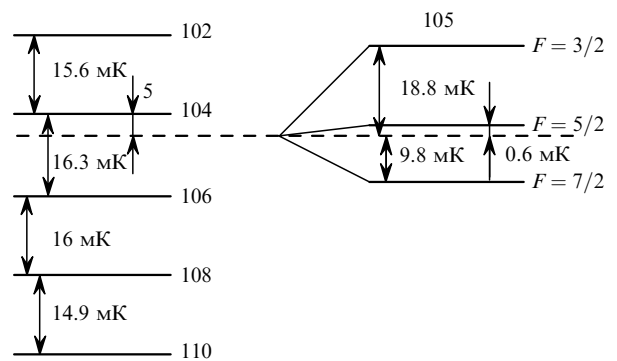


Рис.2. Сдвиги и СТС уровня $4d^9 5p^3 P_1$ в Pd I. Цифры у уровней – массовые числа изотопов; штриховая линия – центр тяжести СТС для изотопа ^{105}Pd .

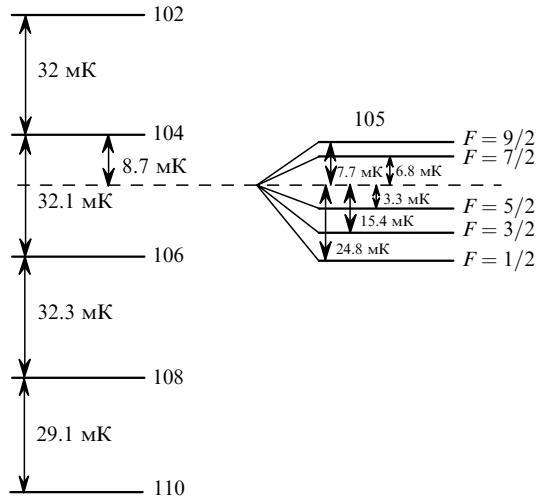


Рис.3. Сдвиги и СТС уровня $4d^9 5s^3 D_2$ в Pd I. Обозначения те же, что и на рис.2.

монографии [11] приведены силы осцилляторов и вероятности переходов для ряда уровней Pd I, в том числе и для необходимых нам переходов между низшими рабочими уровнями (эти данные получены из измерений интенсивностей линий в дуге). Абсолютная погрешность данных, приведенных в [11], сравнительно невелика – порядка фактора 2 (по оценке авторов), относительная погрешность определяется погрешностью измерения отношений интенсивностей линий и гораздо меньше (несколько процентов). Отметим, что приведенные в монографии вероятности даны для переходов в четных изотопах (^{102}Pd , ^{104}Pd и т. д.).

В работе [12] была экспериментально измерена сила осцилляторов f для перехода $4d^9 5p^3 P_1 \rightarrow 4d^{10} 1S_0$. Оказалось, что эта сила ($f = 0.036$) примерно в 2 раза меньше, чем приведенная в [11] ($f = 0.071$). В сравнительно недавней экспериментальной работе [10] было измерено время жизни τ состояния $4d^9 5p^3 P_1$. Оно оказалось равным 7.46 нс, что примерно вдвое больше, чем время жизни, рассчитанное по данным [11]. Экспериментальные результаты работ [10] и [12] согласуются между собой с погрешностью около 5%. Отметим, что время жизни τ было также измерено в более ранней работе [7] и составило 8.9 нс, что приводило к более значительным различиям в вероятностях переходов.

Представленные ниже вероятности переходов определялись следующим образом. Было принято, что относительные вероятности для переходов с уровня $4d^9 5p^3 P_1$ на все другие уровни соответствуют данным [11]. Затем относительные вероятности были нормированы так, чтобы получить для состояния 3P_1 время $\tau = 7.46$ нс, измеренное в [10].

Вероятности переходов в нечетном изотопе (^{105}Pd) были найдены пересчетом по формуле для интенсивностей компонент сверхтонкой структуры:

$$A(JIFM \rightarrow J'IF'M'; \mu) = A_0(2F' + 1) \langle F'M'1\mu | FM \rangle^2 \left\{ \begin{matrix} J'F'I \\ FJ1 \end{matrix} \right\}^2,$$

где $A_0 = (2J + 1)A(J \rightarrow J')$; $I = 5/2$ для изотопа ^{105}Pd ; $\langle F'M'1\mu | FM \rangle$ – коэффициент Клебша – Гордана; $\left\{ \dots \right\}^2$ – $6j$ -символ; $\mu = 0$ и ± 1 для линейной и круговых поляризаций излучения соответственно. Полученные вероятности

Табл.1. Вероятности переходов в четных изотопах Pd I.

Переход	$A (10^6 \text{ c}^{-1})$
$4d^9 5p^3 P_1 \rightarrow 4d^{10} 1S_0$	10.3
$4d^9 5p^3 P_1 \rightarrow 4d^9 5s^3 D_2$	106
$4d^9 5p^3 P_1 \rightarrow 4d^9 5s^3 D_1$	14.2
$4d^9 5p^3 P_1 \rightarrow 4d^9 5s^1 D_2$	2.98

Табл.2. Вероятности переходов между подуровнями СТС в ^{105}Pd .

Переход	$A (10^7 \text{ c}^{-1})$
$4d^9 5p^3 P_1 (F = 3/2) \rightarrow 4d^{10} 1S_0 (F = 5/2)$	1.03
$4d^9 5p^3 P_1 (F = 5/2) \rightarrow 4d^{10} 1S_0 (F = 5/2)$	1.03
$4d^9 5p^3 P_1 (F = 7/2) \rightarrow 4d^{10} 1S_0 (F = 5/2)$	1.03
$4d^9 5p^3 P_1 (F = 3/2) \rightarrow 4d^9 5s^3 D_2 (F = 1/2)$	3.18
$4d^9 5p^3 P_1 (F = 3/2) \rightarrow 4d^9 5s^3 D_2 (F = 3/2)$	4.45
$4d^9 5p^3 P_1 (F = 3/2) \rightarrow 4d^9 5s^3 D_2 (F = 5/2)$	2.96
$4d^9 5p^3 P_1 (F = 5/2) \rightarrow 4d^9 5s^3 D_2 (F = 3/2)$	1.27
$4d^9 5p^3 P_1 (F = 5/2) \rightarrow 4d^9 5s^3 D_2 (F = 5/2)$	3.87
$4d^9 5p^3 P_1 (F = 5/2) \rightarrow 4d^9 5s^3 D_2 (F = 7/2)$	5.45
$4d^9 5p^3 P_1 (F = 7/2) \rightarrow 4d^9 5s^3 D_2 (F = 5/2)$	0.378
$4d^9 5p^3 P_1 (F = 7/2) \rightarrow 4d^9 5s^3 D_2 (F = 7/2)$	2.27
$4d^9 5p^3 P_1 (F = 7/2) \rightarrow 4d^9 5s^3 D_2 (F = 9/2)$	7.94

сти переходов представлены в табл.1 и 2. Отметим, что отсутствующие в них вероятности переходов $4d^9 5p^3 P_1 \rightarrow 4d^8 5s^2 3F_{2,3,4}$ по литературным данным являются пренебрежимо малыми по сравнению с приведенными. Для нечетного изотопа даны лишь вероятности переходов с подуровней уровня 3P_1 на подуровни уровня 3D_2 . Необходимости в пересчете всех других вероятностей не возникает, поскольку переходы на остальные уровни приводят к затуханию, скорость же затухания подуровня с $JIFM$ за счет переходов на подуровни с $J'IF'M'$ (суммарная скорость по $M'F'$) просто равна вероятности перехода $J \rightarrow J'$ в четном изотопе. Приведенные в табл.1 и 2 вероятности использованы при проведении расчетов, представленных ниже.

3. Эффект Зеемана для уровня $4d^9 5p^3 P_1$ в Pd I

Для получения энергий подуровней уровня с моментом J и вероятностей переходов во внешнем статическом магнитном поле необходимо диагонализировать построенную на базе невозмущенных волновых функций матрицу возмущения атома магнитным полем

$$W_{ij} = \langle JF_i M_i | V | JF_j M_j \rangle + \delta_{ij} \varepsilon_i,$$

где $V = g_J \mu_B B \hat{J}$ – оператор возмущения; g_J – g -фактор ($g_J = 1.396$ для уровня 3P_1); μ_B – магнетон Бора; B_0 – напряженность магнитного поля; \hat{J} – оператор момента электронной оболочки; индексы i, j нумеруют подуровни СТС уровня с моментом J (с полными моментами F_i и проекциями M_i); ε_i – энергия i -го уровня СТС в отсутствие магнитного поля. Полученные в результате диагонализации матрицы энергии магнитных подуровней СТС уровня $4d^9 5p^3 P_1$ для изотопов палладия в трех различных магнитных полях приведены на рис.4.

С увеличением магнитного поля магнитные подуровни всех изотопов палладия расщепляются. Анализ рис.4 показывает, что при напряженности магнитного поля

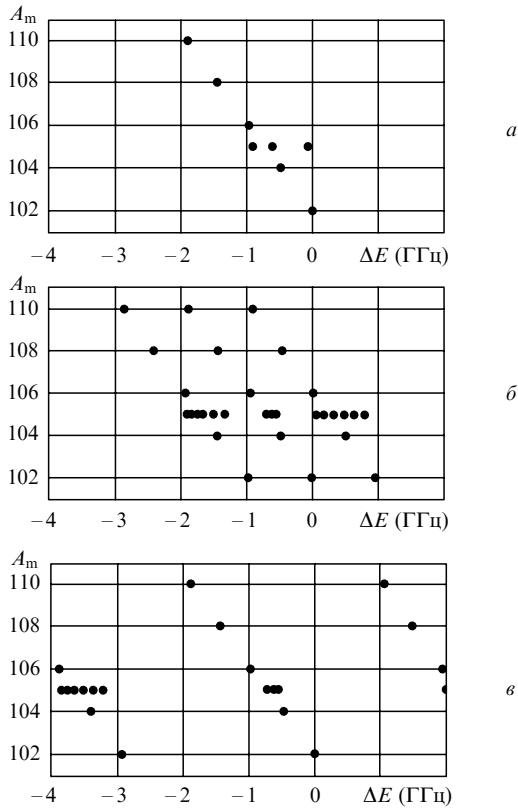


Рис.4. Положения магнитных подуровней уровня $4d^9 5p^3 P_1$ изотопов палладия с массовым числом A_m в отсутствие магнитного поля (а) и во внешнем магнитном поле с $B_0 = 500$ (б) и 1500 Гс (е). Отстройка энергии ΔE отсчитана от энергии магнитного подуровня $4d^9 5p^3 P_1$ изотопа ^{102}Pd при $M_J = 0$.

более 1500 Гс магнитные подуровни всех мешающих изотопов смещаются на расстояния не менее 500 МГц от частоты рабочего перехода, что позволяет обеспечить селективность ионизации изотопа ^{102}Pd .

Отметим, что присутствие магнитного поля накладывает определенные требования на взаимную ориентацию линейно поляризованного лазерного излучения и магнитного поля: для эффективного возбуждения уровня вектор напряженности электрического поля лазерного пучка должен быть параллелен вектору напряженности магнитного поля B_0 , а вектор направления пучка – перпендикулярен B_0 .

4. Расчеты спектральной зависимости фототока и эффективностей ионизации

Для того чтобы получить спектр фототока в зависимости от длины волны лазера, стимулирующего переход $4d^{10} 1S_0 \rightarrow 4d^9 5p^3 P_1$, и от напряженности магнитного поля, была развита многоуровневая кинетическая модель фотоионизации (подробнее см. ссылки в [1, 2]). Она учитывает одновременную ионизацию всех изотопов, попадающих в спектр возбуждающего лазера, и соответственно позволяет определить результирующее обогащение при селективной фотоионизации.

Рассматривалась задача о фотоионизации оптически тонкого слоя паров Pd. Изотопный состав паров полагался естественным. Спектр излучения лазера мог выбираться гауссовым либо лоренцевским (задавались ширина линии и вид спектра), спектральный состав излучения ионизирующего лазера несуществен при ионизации как в

континуум, так и через автоионизационные состояния из-за большой их ширины. Решение задачи проводилось в два этапа. На первом исследовалось влияние эффекта Зеемана на изотопы палладия в заданном магнитном поле. В результате определялись энергии всех магнитных подуровней уровня $4d^9 5p^3 P_1$ всех изотопов палладия и вычислялись вероятности разрешенных переходов между ними.

Среда (пары Pd) характеризовалась плотностью и распределением атомов по проекции скорости на направление распространения лазерных пучков. Атомы среды делились на n групп ($n = 5 - 15$). Для каждой скоростной группы записывались уравнения баланса (в приближении заданной интенсивности) для полной системы всех подуровней уровня $4d^9 5p^3 P_1$ каждого из изотопов Pd. Распределение атомов по скоростям могло задаваться произвольным (в приводимых ниже результатах расчетов оно полагалось максвелловским (гауссовым)).

Система уравнений баланса решалась стандартным методом Рунге – Кутты 4-го порядка. В этой системе учитывались следующие процессы: фотовозбуждение (девозбуждение) лазерным излучением уровня 3P_1 , затухание этого уровня за счет радиационных переходов в неучтенные в модели состояния и фотоионизация в континуум возбуждающим и ионизирующим лазерами (с сечением фотоионизации $\sigma = 1.2 \times 10^{-16} \text{ см}^2$). Отметим, что скорость затухания подуровней уровня 3P_1 в силу соотношений ортогональности и полноты для $3jm$ -символов одинакова для всех подуровней. Считалось, что поляри-

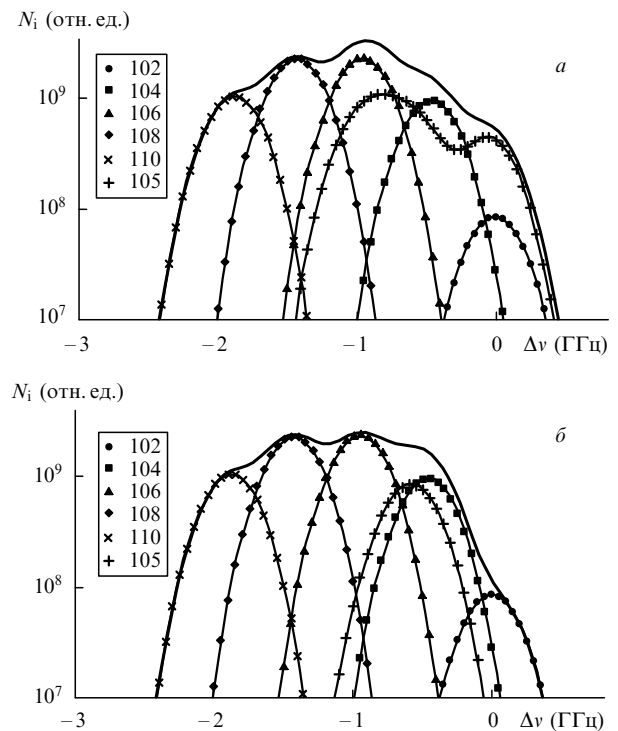


Рис.5. Изотопический состав плотности ионов N_i , образующихся в зоне селективной фотоионизации, в зависимости от отстройки частоты селективирующего лазера $\Delta \nu$ от частоты перехода $4d^9 5p^3 P_1 \rightarrow 4d^{10} 1S_0$ в ^{102}Pd в отсутствие магнитного поля (а) и в магнитном поле с $B_0 = 2000$ Гс (б). Цифры у точек – массовые числа изотопов, сплошная линия – суммарная плотность ионов. Пиковая интенсивность селективирующего лазера равна 10 Вт/см^2 , ионизирующего – 100 кВт/см^2 . Ширины (по полувьсоте) атомных линий и линии лазера составляют 300 МГц, форма линий – гауссова, поляризация излучения – линейная.

зация лазерного излучения является смесью линейной поляризации с левой и правой круговыми поляризациями (доли каждой из поляризаций задавались в процессе исследований).

Два примера результатов расчетов спектральной зависимости фототока (при $B_0 = 0$ и 2000 Гс) приведены на рис.5. Расчеты показывают, что в отсутствие магнитного поля нереально получить высокое обогащение по изотопу ^{102}Pd из-за блендирования его линии линией изотопа ^{105}Pd . В магнитном поле с $B_0 = 2000$ Гс высокое обогащение (при приемлемом КПД ионизации) можно получить в диапазоне отстроек частот селектирующего лазера 0–300 МГц.

Анализ зависимостей выхода фотоионов от пиковых интенсивностей селектирующего и ионизирующего лазеров показал, что при ширине линий лазера и атомных линий порядка 300 МГц для обеспечения КПД ионизации 40 % необходимы пиковые интенсивности 30 Вт/см² и 1 МВт/см² для первого и второго лазеров соответственно.

5. Выводы

Таким образом, имеющиеся в литературе [4–12] спектроскопические данные по изотопической структуре

уровней и вероятностям переходов в палладии позволяют сделать вывод о том, что использование зеемановского расщепления во внешнем магнитном поле открывает возможность высокоселективной ступенчатой фотоионизации ^{102}Pd . Однако литературные данные для сверхтонкой и спектроскопической структур уровня $4d^9 5p^3 P_1$ нуждаются в экспериментальной проверке.

Авторы благодарны В.И.Держиеву, стимулировавшему данную работу.

1. Яковленко С.И. *Квантовая электроника*, **25**, 971 (1998).
2. Yakovenko S.I. *Laser and Particle Beams*, **16**, 541 (1998).
3. Яковленко С.И. *Изв. вузов. Сер. Физика*, **42**, № 8, 82 (1999).
4. Yamaguchi H., Sasao N. *Proc. of Intern. Symp. on Advanced Nuclear Energy Research* (Oarai, Ibaraki, Japan, 1989; JAERI, 1990, p. 129–134).
5. Moore C.E. *Atomic energy levels. NBS Circ. 467* (New York, 1958, vol. 3).
6. Karamatskos N., et al. *Phys. Lett. A*, **102**, 409 (1984).
7. Budick B. *Phys. Rev.*, **168**, 89 (1968).
8. Baird P.E.G. *Proc. Roy. Soc. Lond. A*, **351**, 267 (1976).
9. Kummel E., Baumann M., Kischel C.S. *Zr. Physik. D*, **25**, 161 (1993).
10. Liening H. *Zr. Physik*, **266**, 287 (1974).
11. Корлисс Ч., Бозман У. *Вероятности переходов и силы осцилляторов 70 элементов* (М.: Мир, 1968).
12. Lawrence G.M., Link J.K., King R.B. *Astrophys. J.*, **141**, 293 (1965).