

ОБОЗРЫ АКТУАЛЬНЫХ ПРОБЛЕМ

Новые подходы к молекулярному лазерному разделению изотопов урана

Г.Н. Макаров

Большой интерес к лазерному разделению изотопов урана стимулировал разработку и развитие в конце XX — начале XXI века целого ряда методов и подходов с использованием как атомарного, так и молекулярного вариантов разделения изотопов. Поиск эффективных лазерных методов разделения изотопов урана активно проводится во многих странах и сегодня. Представлен обзор новых подходов к молекулярному лазерному разделению изотопов (МЛРИ) урана. В основе этих подходов лежит процесс резонансного изотопно-селективного многофотонного возбуждения высоких колебательных состояний ($2\nu_3$ и $3\nu_3$) молекул $^{235}\text{UF}_6$ и $^{238}\text{UF}_6$ в газодинамически охлаждённых молекулярных потоках бихроматическим лазерным ИК-излучением и последующая диссоциация возбуждённых молекул теми же лазерными импульсами. Рассматриваются основы таких подходов. Приведены и обсуждаются результаты экспериментов по двух- и трёхфотонному возбуждению молекул SF_6 , которые по своим спектроскопическим свойствам являются аналогами молекул UF_6 , в колебательные состояния $2\nu_3$ и $3\nu_3$ соответственно двух- и трёхчастотным излучением импульсных CO_2 -лазеров. Предложены и анализируются конкретные схемы и параметры резонансного двух- и трёхфотонного изотопно-селективного возбуждения молекул $^{235}\text{UF}_6$ и $^{238}\text{UF}_6$ в колебательные состояния $2\nu_3$ и $3\nu_3$ бихроматическим ИК-излучением двух импульсных CF_4 -лазеров, а также двух пара- H_2 -лазеров, генерирующих в области 16 мкм. Рассматривается метод изотопно-селективного возбуждения и диссоциации молекул UF_6 в смеси с сенсбилизатором (молекулами SF_6) в неравновесных термодинамических условиях скачка уплотнения. Показана возможность реализации с предложенными подходами низкоэнергетических методов МЛРИ урана.

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

PACS numbers: 07.77.Gx, **28.60.+s**, **33.80.-b**, **36.40.-c**, **42.62.-b**, 42.62.Fi, 82.50.Bc

DOI: <https://doi.org/10.3367/UFN.2023.02.039325>

Содержание

1. Введение (48).
2. Основы метода резонансного многочастотного возбуждения высоких колебательных состояний молекул (50).
3. Резонансное многофотонное возбуждение колебательных состояний $2\nu_3$ и $3\nu_3$ молекул SF_6 многочастотным излучением импульсных CO_2 -лазеров (50).
4. Схемы и параметры резонансного изотопно-селективного двух- и трёхфотонного возбуждения состояний $2\nu_3$ и $3\nu_3$ молекул $^{235}\text{UF}_6$ и $^{238}\text{UF}_6$ лазерным ИК-излучением (52).
 - 4.1. Общие замечания. 4.2. Резонансное двухфотонное возбуждение состояний $2\nu_3$ молекул $^{238}\text{UF}_6$ и $^{235}\text{UF}_6$. 4.3. Резонансное трёхфотонное возбуждение состояний $3\nu_3$ молекул $^{238}\text{UF}_6$ и $^{235}\text{UF}_6$.

5. Обсуждение схем изотопно-селективного заселения состояний $2\nu_3$ и $3\nu_3$ молекул $^{235}\text{UF}_6$ и $^{238}\text{UF}_6$ (55).
 6. Метод изотопно-селективного возбуждения и диссоциации молекул UF_6 с сенсбилизатором бихроматическим лазерным ИК-излучением в скачке уплотнения (56).
 7. Заключение (57).
- Список литературы (58).

1. Введение

Одним из важнейших применений лазеров практически сразу после создания стало их использование в селективной фотофизике и фотохимии, в том числе в исследованиях по лазерному разделению изотопов различных элементов, включая изотопы урана [1–7]. Исследования по лазерному разделению изотопов урана проводились в двух направлениях: с использованием в качестве исходного вещества атомарного пара металлического урана (метод AVLIS — Atomic Vapor Laser Isotope Separation) [7–17] и молекулярного газа UF_6 (метод MLIS — Molecular Laser Isotope Separation) [7, 10, 13, 17–25].

Г.Н. Макаров. Институт спектроскопии РАН,
ул. Физическая 5, 108840 Троицк, Москва, Российская Федерация
E-mail: gmakarov@isan.troitsk.ru

Статья поступила 19 января 2023 г.,
после доработки 17 февраля 2023 г.

В случае атомарного варианта для возбуждения атомов урана в экспериментальных исследованиях, а также в технологии для изотопно-селективного возбуждения атомов урана использовались перестраиваемые по длине волны генерации лазеры на красителях, накачиваемые лазерами на парах меди [2, 8–17]. В подавляющем большинстве экспериментов применялись схемы трёх- или четырёхчастотной ионизации атомов [2, 23].

В рамках исследований по молекулярному варианту разделения изотопов урана применялось довольно много методов, основанных на селективной диссоциации молекул UF_6 [2]. Это — метод изотопно-селективной диссоциации UF_6 ультрафиолетовым (УФ) лазерным излучением, метод двухступенчатой ИК + УФ диссоциации UF_6 , метод многоступенчатой ИК + УФ диссоциации UF_6 , методы двух- и трёхчастотной ИК многофотонной диссоциации (МФД) молекул UF_6 . Проводились также исследования с применением низкоэнергетических методов изотопно-селективного подавления кластеризации молекул UF_6 и селективной диссоциации небольших кластеров UF_6 лазерным ИК-излучением (см. обзор [2] и приведённые там ссылки). Наилучшие результаты были получены с применением метода изотопно-селективной ИК многофотонной диссоциации молекул UF_6 [1–7].

В исследованиях по МЛРИ урана методом селективной ИК многофотонной диссоциации молекул UF_6 использовались генерирующей в области 16 мкм оптически накачиваемый излучением мощного CO_2 -лазера молекулярный CF_4 -лазер [26, 27] и пара- H_2 -лазер [28], основанный на смещении частоты излучения CO_2 -лазера в область 16 мкм за счёт стимулированного комбинационного (рамановского) рассеяния в пара-водороде.

В 1970–1980-х гг. в целом ряде высокоразвитых стран (в США, Германии, Англии, Франции, Японии, Австралии) велись работы в рамках закрытых проектов по лазерному разделению изотопов урана [8–13, 17–24]. Работы проводились с использованием как атомарного, так и молекулярного вариантов. Ожидалось, что с применением лазеров можно разработать более экономичную и эффективную, чем центрифугирование, технологию обогащения урана — лазерную технологию.

Однако большинство существовавших в конце XX века проектов по лазерному разделению изотопов урана по ряду причин было закрыто [1, 2]. Во многих случаях это объяснялось экономическими факторами, а также отсутствием мощных и эффективных лазеров. Считалось, что на том этапе развития лазерной технологии создание модулей промышленного типа для лазерного разделения изотопов урана нерентабельно [25]. В то же время в ряде проектов было показано [2, 8, 9, 11, 12, 24], что экономическая эффективность лазерных методов обогащения урана сопоставима с таковой наиболее продвинутых центрифужных методов. Основная причина закрытия проектов по лазерному разделению изотопов урана была политико-экономическая. Она была результатом заключения в 1993 г. между Россией и США межправительственного соглашения ВОУ–НОУ (высокообогащённый уран–низкообогащённый уран) (Программа "Мегатонны в мегаватты" — Megatons to Megawatts Program) [29, 30]. Данное соглашение действовало 20 лет (до 2013 г). Согласно ему США покупала у России для своих атомных электростанций низкообогащённый уран, вырабатываемый из оружейного урана. Последствием этого в США стало замедление развития технологий по

разделению изотопов урана. Вместе с тем во многих странах (в США, Австралии, Японии, Южной Кореи, Индии, Иране, Китае, ЮАР) исследования по лазерному разделению изотопов урана проводятся и сегодня [1, 2, 31–41].

В настоящее время такие исследования направлены главным образом на разработку низкоэнергетических методов МЛРИ урана [1, 2, 7, 33, 42–51]. Исследуются также альтернативные им методы [52–55]. Среди низкоэнергетических методов МЛРИ наиболее перспективными считаются [1, 2, 47, 51] метод изотопно-селективного подавления кластеризации молекул и метод изотопно-селективной диссоциации небольших слабосвязанных ван-дер-ваальсовых кластеров (в частности, димеров). Вероятно, именно эти процессы положены в основу разрабатываемой сегодня в США и Австралии лазерной технологии обогащения урана SILEX (Separation of Isotopes by Laser EXcitation) [56–60] (см. также обзоры [1, 2, 51]).

В ходе выполнения проектов по лазерному разделению изотопов урана оптимизировались и улучшались первоначальные характеристики применяемых лазеров. Сегодня используемые для возбуждения молекул UF_6 оптически накачиваемые молекулярные CF_4 - и пара- H_2 -лазеры могут генерировать импульсы излучения длительностью около 100 нс с энергией в импульсе до 0,5–1,0 Дж и спектральной шириной линии генерации $\leq 0,05 \text{ см}^{-1}$ [2, 13, 61–64]. По многим параметрам они удовлетворяют требованиям, которые предъявляются для работы на крупномасштабных установках [2, 13, 61–64].

CF_4 -лазер излучает в области частот 612–650 см^{-1} [61, 62, 65–67] и имеет более ста линий генерации [65, 66]. В основе работы пара- H_2 -лазера лежит процесс вынужденного комбинационного рассеяния излучения мощного CO_2 -лазера на вращательных переходах молекулярного водорода. При таком неупругом рассеянии частота излучения CO_2 -лазера уменьшается на величину вращательного кванта молекулы H_2 ($\approx 354,33 \text{ см}^{-1}$) и попадает в 16-микронный диапазон [28]. Перестройка частоты излучения CO_2 -лазера автоматически ведёт к перестройке частоты излучения пара- H_2 -лазера.

Существенными недостатками как CF_4 -лазера, так и пара- H_2 -лазера применительно к разделению изотопов урана являются дискретность перестройки частоты излучения указанных лазеров и отсутствие сильных и перестраиваемых линий генерации в области Q-ветви колебания ν_3 молекул $^{235}UF_6$ (в области 628,32 см^{-1} [68, 69]). Поэтому с помощью CF_4 -лазера не удалось реализовать изотопно-селективную диссоциацию молекул UF_6 , хотя в целом ряде работ он использовался в экспериментах по двухчастотному возбуждению и диссоциации UF_6 [2, 70]. Разделение изотопов урана со сравнительно высокой селективностью процесса ($\alpha \geq 4$) было осуществлено в работах [71, 72] методом ИК МФД молекул UF_6 с использованием двух [71] и трёх [72] пара- H_2 -лазеров. На первой ступени изотопно-селективное возбуждение молекул $^{235}UF_6$ осуществлялось лазером с плавно перестраиваемой частотой излучения, а дальнейшее их возбуждение и диссоциация — лазерами с фиксированной частотой генерации. Следует отметить, что использование пара- H_2 -лазеров с плавно перестраиваемой частотой излучения существенно усложняет техническую реализацию данного метода на практике.

В качестве другого подхода к МЛРИ урана рассматривается метод изотопно-селективного возбуждения состояния $3\nu_3$ молекул $^{235}\text{UF}_6$ ($\approx 1877,5 \text{ см}^{-1}$ [73, 74]), в котором изотопический сдвиг составляет около $1,81 \text{ см}^{-1}$ [68, 69], излучением СО-лазера [37–40, 75, 76]. В данном подходе используется химическая реакция колебательно-возбуждённых молекул UF_6 с молекулами HCl [37–40]. Разделение изотопов урана происходит за счёт различия в скоростях реакции колебательно-возбуждённых и невозбуждённых молекул UF_6 с молекулами HCl . В работе [38] таким методом осуществлено разделение изотопов урана с селективностью $\alpha = 1,2$. Для этого подхода создаются мощные СО-лазеры [75, 76], генерирующие в области 5,3 мкм, которые планируется использовать для возбуждения молекул $^{235}\text{UF}_6$. Однако эффективное возбуждение состояний $3\nu_3$ молекул UF_6 ИК-излучением с длиной волны $\approx 5,33 \text{ мкм}$ проблематично из-за слабого поглощения молекул UF_6 на колебательном переходе $0\nu_3 \rightarrow 3\nu_3$. Интегральное поглощение оберточной полосы $0\nu_3 \rightarrow 3\nu_3$ молекул UF_6 ($\Gamma_{0\rightarrow 3} = 3,8 \times 10^{-2} \text{ км моль}^{-1}$) более чем на четыре порядка (примерно в $1,8 \times 10^4$ раз) меньше интегрального поглощения основной полосы $0\nu_3 \rightarrow 1\nu_3$ UF_6 ($\Gamma_{0\rightarrow 1} \approx 6,7 \times 10^2 \text{ км моль}^{-1}$) [73].

Поэтому поиск альтернативных схем изотопно-селективного возбуждения высоких колебательных состояний молекул $^{235}\text{UF}_6$ представляется весьма важным и актуальным. Именно такой альтернативой могут стать методы, в основе которых лежит процесс резонансного многофотонного возбуждения высоких колебательных состояний молекул $^{235}\text{UF}_6$ и $^{238}\text{UF}_6$ многочастотным лазерным ИК-излучением [77]. Отметим, что резонансное многофотонное возбуждение высоких колебательных состояний молекул двух- или трёхчастотным ИК-излучением представляет большой интерес также в исследованиях по разработке и созданию оптически накачиваемых молекулярных лазеров [61, 64, 78].

Возбуждение молекул UF_6 в высокие колебательные состояния $2\nu_3$ и $3\nu_3$ можно использовать для разделения изотопов урана с применением низкоэнергетических методов, в основе которых лежат процессы с энергией активации не более $0,1–0,2 \text{ эВ}$ [1, 2, 50, 51]. Такие энергии активации характерны для процессов адсорбции и десорбции молекул на поверхности, в том числе на поверхности кластеров, а также для процессов диссоциации и фрагментации слабосвязанных ван-дер-ваальсовых молекул (например, энергия диссоциации $\text{UF}_6–\text{Ar} \leq 0,1 \text{ эВ}$ [1, 2, 79, 80]).

Обзор построен следующим образом. В разделе 2 дано краткое описание метода резонансного многофотонного возбуждения высоких колебательных состояний молекул многочастотным лазерным ИК-излучением. В разделе 3 приведены и подробно рассматриваются результаты ранних исследований по резонансному многофотонному возбуждению молекул SF_6 в колебательные состояния $2\nu_3$ и $3\nu_3$ соответственно двух- и трёхчастотным излучением импульсных CO_2 -лазеров. В разделе 4 представлены и анализируются конкретные схемы и параметры резонансного двух- и трёхфотонного изотопно-селективного возбуждения молекул $^{235}\text{UF}_6$ и $^{238}\text{UF}_6$ в колебательные состояния $2\nu_3$ и $3\nu_3$ бихроматическим ИК-излучением двух импульсных CF_4 -лазеров, а также двух пара- H_2 -лазеров, генерирующих в области 16 мкм. В разделе 5 кратко обсуждаются предложенные подходы в плане реализации оптимальной селективности диссо-

циации молекул UF_6 . В разделе 6 рассматривается метод селективного возбуждения молекул $^{235}\text{UF}_6$ и $^{238}\text{UF}_6$ в колебательные состояния $2\nu_3$ и $3\nu_3$ и их диссоциации из этих состояний в неравновесных термодинамических условиях скачка уплотнения с использованием для увеличения эффективности процессов сенсibilизатора — молекул SF_6 . В заключительном разделе 7 приведены основные результаты работы и вытекающие из них выводы.

2. Основы метода резонансного многочастотного возбуждения высоких колебательных состояний молекул

Многофотонное возбуждение высоких колебательных состояний молекул можно реализовать при когерентном воздействии на молекулы нескольких лазерных полей, сумма частот которых удовлетворяет условию многофотонного резонанса [77]. Так, например, для резонансного возбуждения колебательных состояний $2\nu_3$ и $3\nu_3$ молекул UF_6 излучением двух импульсных ИК-лазеров необходимо, чтобы выполнялись следующие соотношения между частотами ν_{L1} и ν_{L2} излучения используемых лазеров и частотой ν_3 возбуждаемого колебания молекул UF_6 :

$$\nu_{L1} + \nu_{L2} = 2\nu_3, \quad (1)$$

$$2\nu_{L1} + \nu_{L2} = 3\nu_3, \quad (2a)$$

$$\nu_{L1} + 2\nu_{L2} = 3\nu_3. \quad (2b)$$

В случае соотношения (2a) предполагается, что возбуждение состояния $3\nu_3$ UF_6 происходит при поглощении двух фотонов из поля одного (например, более низкочастотного, чем частота колебания ν_3 молекулы UF_6) лазерного импульса и одного фотона — из поля другого (более высокочастотного, чем частота колебания ν_3 молекулы) лазерного импульса. В случае соотношения (2b) предполагается, что возбуждение состояния $3\nu_3$ UF_6 происходит при поглощении одного фотона из поля низкочастотного лазерного импульса и двух фотонов из поля более высокочастотного, чем частота колебания ν_3 молекулы UF_6 , лазерного импульса.

С использованием двух или трёх лазеров, имеющих разные частоты излучения, сравнительно легко обеспечить резонансные условия для возбуждения высоких колебательных уровней молекул. Особенно просто это реализовать в условиях, когда используются лазеры высокого давления с плавной перестройкой частоты излучения. Необходимым условием для реализации таких экспериментов является точное знание частот (энергий) высоких колебательных уровней исследуемых молекул. Для молекул SF_6 [81] и UF_6 [74] такие данные были получены исследователями в Лос-Аламосской научной лаборатории в ходе выполнения проектов по молекулярному лазерному разделению изотопов урана.

3. Резонансное многофотонное возбуждение колебательных состояний $2\nu_3$ и $3\nu_3$ молекул SF_6 многочастотным излучением импульсных CO_2 -лазеров

В работах [82, 83] на примере SF_6 показано, что эффективное заселение высоких колебательных состояний молекул можно реализовать в результате их многофо-

тонного возбуждения с использованием двух [82] или трёх [83] лазерных импульсов, имеющих разные частоты, суммарная частота которых равна частоте перехода молекул из основного колебательного состояния в возбуждаемое высоколежащее состояние. В работе [82] проводилось резонансное заселение состояния $2\nu_3 A_1$ ($\approx 1889,0 \text{ см}^{-1}$ [81]) SF_6 при одновременном воздействии на молекулы двух симметрично отстроенных от резонанса лазерных полей (рис. 1а). Возбуждение охлаждённых в импульсной газодинамической струе молекул SF_6 (в смеси SF_6/H_2 при соотношении давлений 1/20) проводилось излучением плавно перестраиваемого CO_2 -лазера высокого давления и перестраиваемого по линиям генерации TEA CO_2 -лазера с частотами соответственно ν_{L1} и ν_{L2} . Частота Q-ветви полосы поглощения колебания ν_3 $^{32}\text{SF}_6$ равна $\approx 948,1 \text{ см}^{-1}$ [81]. Частота излучения плавно перестраиваемого CO_2 -лазера ν_{L1} изменялась в диапазоне $936\text{--}952 \text{ см}^{-1}$. Дискретно перестраиваемый по частоте лазер настраивался в низкочастотной области полосы линейного поглощения колебания ν_3 молекул SF_6 на линию излучения либо 10P(26) (частота $\nu_{L2} = 939,69 \text{ см}^{-1}$), либо 10P(28) ($\nu_{L2} = 936,80 \text{ см}^{-1}$).

Резонансное возбуждение состояния $2\nu_3 A_1$ ($\approx 1889,0 \text{ см}^{-1}$) молекул SF_6 происходило в случае, когда реализовывалось условие $\nu_{L1} + \nu_{L2} = 1889,0 \text{ см}^{-1}$. Диссоциация молекул осуществлялась на частоте $\nu_{L3} = 929,02 \text{ см}^{-1}$ (линия 10P(36) лазера). Выход диссоциации SF_6 измерялся по интенсивности ИК-люминесценции (рис. 1б) колебательно-возбуждённых молекул HF^* , образующихся в результате реакции атомов фтора (продукта диссоциации SF_6) с молекулами водорода. Показано [82], что с помощью используемой схемы через состояние $2\nu_3 A_1$ при сравнительно умеренных плотностях энергии лазерного излучения ($\approx 0,2\text{--}0,3 \text{ Дж см}^{-2}$) можно возбудить из основного состояния около 30 % молекул SF_6 . Установлено [82] (см. также рис. 1б), что спектральные ширины наблюдаемых полос резонансного двухфотонного возбуждения молекул SF_6 бихроматическим излучением двух импульсных CO_2 -лазеров сравнительно малы ($\leq 0,1 \text{ см}^{-1}$). Они значительно меньше величины изотопического сдвига в спектрах ИК-поглощения колебаний ν_3 молекул SF_6 ($A_{is} \approx 17 \text{ см}^{-1}$ для молекул $^{32}\text{SF}_6$ и $^{34}\text{SF}_6$ [1, 2]) и примерно сопоставимы с ширинами Q-ветвей в спектрах поглощения колебательно охлаждённых молекул SF_6 и UF_6 в газодинамической струе ($\leq 0,2\text{--}0,3 \text{ см}^{-1}$ [22]). Следовательно, эту методику можно применить для изотопно-селективной диссоциации молекул.

Таким же способом в работе [82] проведено резонансное возбуждение высоких колебательных состояний моды ν_3 молекул OsO_4 . Исследование спектра многофотонного возбуждения OsO_4 с применением этой методики позволило выявить резонансы, расположенные вблизи Q-ветви основного перехода молекулы ($\approx 961 \text{ см}^{-1}$ [85, 86]). Указанный диапазон недоступен для монохроматического возбуждения, так как попадает в провал между P- и R-ветвями генерации CO_2 -лазера.

В работе [83] реализовано эффективное резонансное возбуждение состояния $3\nu_3 F_1$ ($\approx 2827,55 \text{ см}^{-1}$ [81]) молекул SF_6 , охлаждённых в импульсной газодинамической струе, импульсами излучения трёх дискретно перестраиваемых по частоте CO_2 -лазеров (рис. 2а). Колебательная, вращательная и поступательная температуры молекул в струе составляли соответственно $T_{\text{vib}} \leq 150 \text{ К}$ и $T_{\text{rot}} \approx T_{\text{tr}} \leq 20 \text{ К}$ [87]. Ширина полосы ИК-поглощения коле-

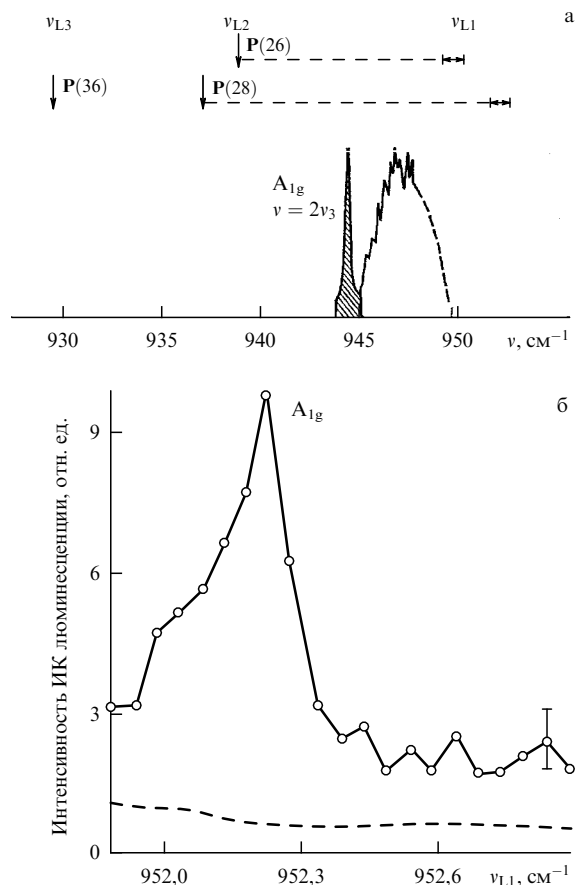


Рис. 1. (а) Частоты излучения CO_2 -лазеров для бихроматического возбуждения молекул SF_6 в состоянии $2\nu_3 A_1$ ($\approx 1889,0 \text{ см}^{-1}$) и последующей их диссоциации третьим лазерным импульсом [82]. Внизу показан спектр многофотонного возбуждения молекул SF_6 в газодинамически охлаждённом молекулярном потоке, полученный в работе [84] с помощью CO_2 -лазера высокого давления с плавной перестройкой частоты. Пик двухфотонного возбуждения молекул монохроматическим излучением в состоянии $2\nu_3 A_1$ заштрихован. (б) Спектральная зависимость интенсивности ИК-люминесценции при бихроматическом возбуждении SF_6 для $\nu_{L1} = 951,7\text{--}952,8 \text{ см}^{-1}$, $\nu_{L2} = 936,8 \text{ см}^{-1}$ (линия 10P(28)); штриховая линия — "фоновый" сигнал в отсутствие поля на частоте ν_{L2} [82].

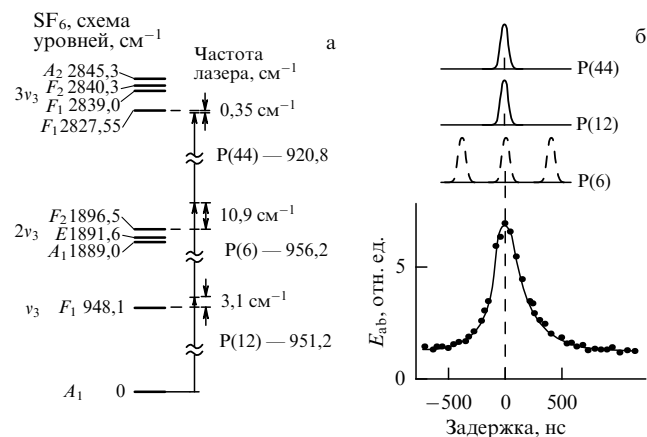


Рис. 2. (а) Схема трёхчастотного возбуждения состояния $3\nu_3 F_1$ ($2827,55 \text{ см}^{-1}$) молекул SF_6 в газодинамически охлаждённом молекулярном потоке [83]. (б) Зависимость поглощённой молекулами SF_6 энергии от времени задержки между двумя предварительно синхронизованными импульсами CO_2 -лазеров (P(12) + P(44)) и третьим импульсом (P(6)) при плотности энергии на линиях P(6), P(12) и P(44) — 0,6, 0,2 и 0,5 Дж см^{-2} соответственно [83].

бания ν_3 SF₆ при таком охлаждении составляет менее $3,5 \text{ см}^{-1}$ на полувисоте [68]. Используемые для возбуждения молекул лазеры работали на частотах $\nu_{L1} = 951,19 \text{ см}^{-1}$ (линия 10P(12)), $\nu_{L2} = 956,18 \text{ см}^{-1}$ (линия 10P(6)) и $\nu_{L3} = 920,83 \text{ см}^{-1}$ (линия 10P(44)). Отстройки указанных частот генерации лазеров от частоты Q-ветви перехода $0\nu_3 \rightarrow 1\nu_3$ молекул SF₆ составляли от $3,1$ до $27,2 \text{ см}^{-1}$.

Отметим, что ни одна из частот генерации лазеров, используемых для возбуждения молекул SF₆, 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 $0,35 \text{ см}^{-1}$) была равна частоте перехода $0\nu_3 \rightarrow 3\nu_3 F_1$ ($\approx 2827,55 \text{ см}^{-1}$ [81]) ($\nu_{L1} + \nu_{L2} + \nu_{L3} = 2827,20 \text{ см}^{-1}$ [83]). Эффект резонансного заселения состояния $3\nu_3 F_1$ молекул SF₆ регистрировался путём измерения поглощённой молекулами энергии в условиях раздельного и одновременного воздействия на молекулы всеми тремя импульсами (рис. 2б). Установлено [83], что при совпадении во времени всех трёх лазерных импульсов происходит эффективное возбуждение молекул SF₆ через колебательное состояние $3\nu_3 F_1$. При этом происходило также возбуждение молекул в более высокие колебательные состояния. Показано, что в случае трёхфотонного возбуждения SF₆ достигается более контрастное заселение возбуждаемого состояния $3\nu_3$, чем при двухфотонном возбуждении состояния $2\nu_3$. Последнее видно из сопоставления показанных соответственно на рис. 2б и 1б отношений (контрастов) величин резонансных сигналов к величинам фоновых сигналов, которые связаны с возбуждением молекул в нерезонансные состояния. Следствием этого является более высокая селективность процесса диссоциации молекул в первом случае [4, 88, 89]. Установлено также [83, 89], что описанный метод позволяет заселять высокие колебательные состояния молекул SF₆ существенно более эффективно, чем методы одночастотного и последовательного двух- или трёхчастотного возбуждения.

4. Схемы и параметры резонансного изотопно-селективного двух- и трёхфотонного возбуждения состояний $2\nu_3$ и $3\nu_3$ молекул $^{235}\text{UF}_6$ и $^{238}\text{UF}_6$ лазерным ИК-излучением

4.1. Общие замечания

В ходе выполнения проектов по молекулярному лазерному разделению изотопов урана была получена обширная и ценная спектроскопическая информация как о самой молекуле UF₆, так и о лазерах, используемых для возбуждения и диссоциации молекул UF₆ [20–28, 61–68] (см. также обзор [2] и приведённые там ссылки). Полученные результаты дают возможность предсказывать схемы резонансного многофотонного возбуждения высоких колебательных состояний молекул UF₆ излучением нескольких ИК-лазеров. В работах [90–92] предложены конкретные схемы и приведены параметры изотопно-селективного двухфотонного [90, 92] и трёхфотонного [91, 92] бихроматического возбуждения колебательных состояний $2\nu_3$ и $3\nu_3$ молекул $^{238}\text{UF}_6$ и $^{235}\text{UF}_6$ излучением двух CF₄-лазеров, а также двух пара-Н₂-лазеров.

При выборе схем для возбуждения молекул UF₆ и анализе данных о частотах генерации лазеров учитыва-

лась величина изотопического сдвига в ИК-спектрах поглощения колебания ν_3 молекул UF₆ — $\Delta_{is} \approx 0,604 \text{ см}^{-1}$ [68, 69] в состоянии $1\nu_3$ для молекул $^{238}\text{UF}_6$ и $^{235}\text{UF}_6$. При выборе оптимальных частот для возбуждения молекул рассматривались только наиболее интенсивные линии генерации как CF₄-лазеров [65, 66], так и CO₂-лазеров, применяемые для накачки пара-Н₂-лазеров. Наиболее интенсивной линией генерации CF₄-лазера является линия на частоте $\approx 615,1 \text{ см}^{-1}$ [65, 66], которая излучается при накачке молекул CF₄ на линии 9R(12) CO₂-лазера (частота $1073,28 \text{ см}^{-1}$). Довольно интенсивными являются также линии излучения CF₄-лазера на частотах $\approx 612,2 \text{ см}^{-1}$, $\approx 618,2 \text{ см}^{-1}$, $\approx 631,4 \text{ см}^{-1}$, $\approx 642,4 \text{ см}^{-1}$, $\approx 643,1 \text{ см}^{-1}$, и $\approx 645,1 \text{ см}^{-1}$ [65, 66]. При выборе частот для многофотонного возбуждения молекул UF₆ учитывались прежде всего именно эти линии излучения CF₄-лазера.

Следует отметить, что частоты многих линий излучения CF₄-лазера определены с погрешностью не менее $0,1 \text{ см}^{-1}$ [65, 66]. С гораздо меньшей погрешностью ($\approx 0,01 \text{ см}^{-1}$) определены энергии (частоты) возбуждённых колебательных состояний вплоть до состояний $8\nu_3$ молекул $^{238}\text{UF}_6$ [74]. Энергии возбуждённых колебательных состояний молекул $^{235}\text{UF}_6$ устанавливались с учётом изотопического сдвига $\Delta_{is} \approx 0,604 \text{ см}^{-1}$ [68, 69] в колебании ν_3 для молекул $^{238}\text{UF}_6$ и $^{235}\text{UF}_6$, $\Delta_{is} \approx 1,21 \text{ см}^{-1}$ в состоянии $2\nu_3$ и $\Delta_{is} \approx 1,81 \text{ см}^{-1}$ в состоянии $3\nu_3$ UF₆. В предложенных схемах возбуждения состояний $2\nu_3$ и $3\nu_3$ молекул UF₆ нет необходимости в дополнительной подстройке частоты лазеров для резонансного возбуждения молекул, поскольку отстройки суммарных частот излучений лазеров от частот возбуждаемых состояний незначительны (см. ниже рис. 3а и 4а и табл. 1–4).

4.2. Резонансное двухфотонное возбуждение состояний $2\nu_3$ молекул $^{238}\text{UF}_6$ и $^{235}\text{UF}_6$

С использованием двух ИК-лазеров можно осуществить [90, 92] изотопно-селективное возбуждение колебательных состояний $2\nu_3$ молекул UF₆ ($\approx 1253 \text{ см}^{-1}$ [74]). На рисунке 3а представлена схема возбуждения колебательного состояния $2\nu_3 E$ молекул $^{238}\text{UF}_6$ ($\approx 1252,84 \text{ см}^{-1}$ [74]) излучением двух CF₄-лазеров, работающих соответственно на частотах $\nu_{L1} \approx 612,2 \text{ см}^{-1}$ и $\nu_{L2} \approx 640,9 \text{ см}^{-1}$. Двухфотонное бихроматическое возбуждение указанного уровня $2\nu_3 E$ реализуется с отстройкой в конечном состоянии $\Delta\nu_{fin} \approx -0,26 \text{ см}^{-1}$ ($\nu_{L1} + \nu_{L2} = 1253,1 \text{ см}^{-1}$). На рисунке 3б для данного примера приведены (сплошными стрелками) частоты линий генерации CF₄-лазеров и Q-ветви полос поглощения на основных частотах колебания ν_3 молекул $^{238}\text{UF}_6$ и $^{235}\text{UF}_6$ в газодинамически охлаждённом молекулярном потоке. Ширины P- и R-ветвей (не приведены на рис. 3б) спектра ИК-поглощения колебания ν_3 молекул UF₆ при $T \leq 50 \text{ К}$ составляют величину не более 2 см^{-1} [68].

В таблице 1 приведены параметры предложенных схем резонансного двухфотонного бихроматического возбуждения колебательных состояний $2\nu_3$ $^{238}\text{UF}_6$ и $^{235}\text{UF}_6$ ИК-излучением двух CF₄-лазеров. Уровни энергии состояний $2\nu_3$ $^{235}\text{UF}_6$ определялись путём смещения уровней $2\nu_3$ $^{238}\text{UF}_6$ в высокочастотную сторону на величину изотопического сдвига для указанных молекул в состоянии $2\nu_3$ — на $\approx 1,21 \text{ см}^{-1}$.

В таблице 2 приведены параметры схем резонансного двухфотонного бихроматического возбуждения колеба-

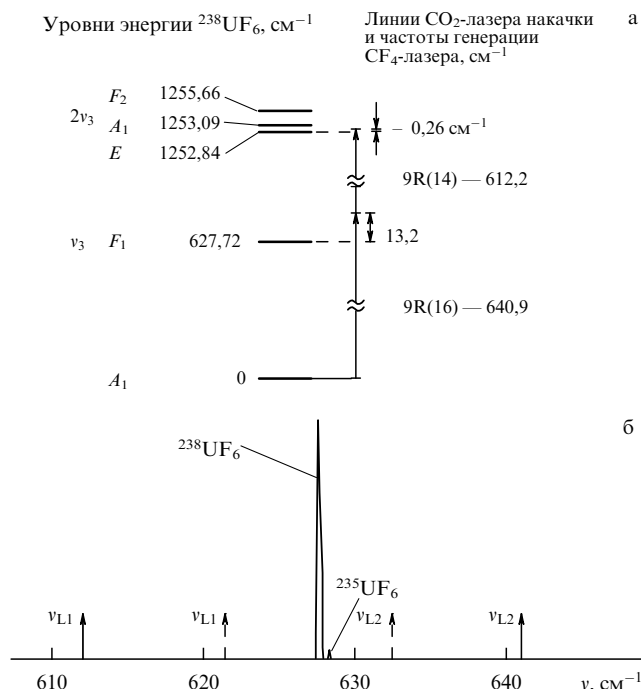


Рис. 3. (а) Схема резонансного двухфотонного бихроматического возбуждения молекул $^{238}\text{UF}_6$ в состояние $2v_3 E$ ($\approx 1252,84 \text{ см}^{-1}$) излучением двух CF_4 -лазеров. Справа приведены линии CO_2 -лазера и частоты генерации CF_4 -лазера [90]. Энергии уровней моды v_3 молекул $^{238}\text{UF}_6$ взяты из работы [74]. (б) Частоты линий излучения двух CF_4 -лазеров (сплошные стрелки) и двух пара- H_2 -лазеров (штриховые стрелки), используемых для резонансного двухфотонного бихроматического возбуждения молекул $^{238}\text{UF}_6$ в состоянии $2v_3 E$ ($\approx 1252,84 \text{ см}^{-1}$) (табл. 1, строка 1) и молекул $^{235}\text{UF}_6$ в состоянии $2v_3 E$ ($\approx 1254,05 \text{ см}^{-1}$) (табл. 2, строка 4), а также Q-ветвей полос линейного поглощения колебания v_3 молекул $^{238}\text{UF}_6$ и $^{235}\text{UF}_6$ в газодинамически охлажденном молекулярном потоке при $T \leq 50 \text{ K}$ [90]. (Q-ветви показаны качественно [22].)

тельных состояний $2v_3 ^{238}\text{UF}_6$ и $^{235}\text{UF}_6$ ИК-излучением двух пара- H_2 -лазеров. Частоты линий генерации пара- H_2 -лазеров для возбуждения состояния $2v_3 E$ $^{235}\text{UF}_6$ ($\approx 1254,05 \text{ см}^{-1}$) (см. табл. 2, строка 4) отмечены на рис. 3б штриховыми стрелками. Как видно из табл. 1 и 2, при применении обоих типов лазеров можно осуществить резонансное возбуждение состояний $2v_3 ^{238}\text{UF}_6$ и $^{235}\text{UF}_6$ с небольшой частотной отстройкой в конечном состоянии, что способствует достижению высокой селективности процесса возбуждения молекул UF_6 .

Таблица 1. Схемы резонансного двухфотонного бихроматического возбуждения колебательных состояний $2v_3$ молекул $^{238}\text{UF}_6$ и $^{235}\text{UF}_6$ ИК-излучением двух CF_4 -лазеров [90]

Молекула	Возбуждаемое состояние и его частота, см^{-1}	Частота CF_4 -лазера-1 ν_{L1} , см^{-1}	Линия и частота CO_2 -лазера-1 накачки, см^{-1}	Частота CF_4 -лазера-2 ν_{L2} , см^{-1}	Линия и частота CO_2 -лазера-2 накачки, см^{-1}	Частотная отстройка в конечном состоянии, $\Delta\nu_{\text{fin}} = 2v_3 - (\nu_{L1} + \nu_{L2})$, см^{-1}
$^{238}\text{UF}_6$	$2v_3 E$ (1252,84)	612,2	9R(14), 1074,65	640,9	9R(16), 1075,99	-0,26
$^{238}\text{UF}_6$	$2v_3 A_1$ (1253,09)	612,2	9R(14), 1074,65	640,9	9R(16), 1075,99	-0,01
$^{238}\text{UF}_6$	$2v_3 F_2$ (1255,66)	612,2	9R(14), 1074,65	643,1	9R(20), 1078,59	+0,36
$^{235}\text{UF}_6$	$2v_3 E$ (1254,05)	612,2	9R(14), 1074,65	641,9	9R(18), 1077,30	-0,05
$^{235}\text{UF}_6$	$2v_3 A_1$ (1254,30)	612,2	9R(14), 1074,65	642,4	9P(4), 1060,57	-0,30
$^{235}\text{UF}_6$	$2v_3 F_2$ (1256,87)	615,1	9R(12), 1073,28	641,9	9R(18), 1077,30	-0,13

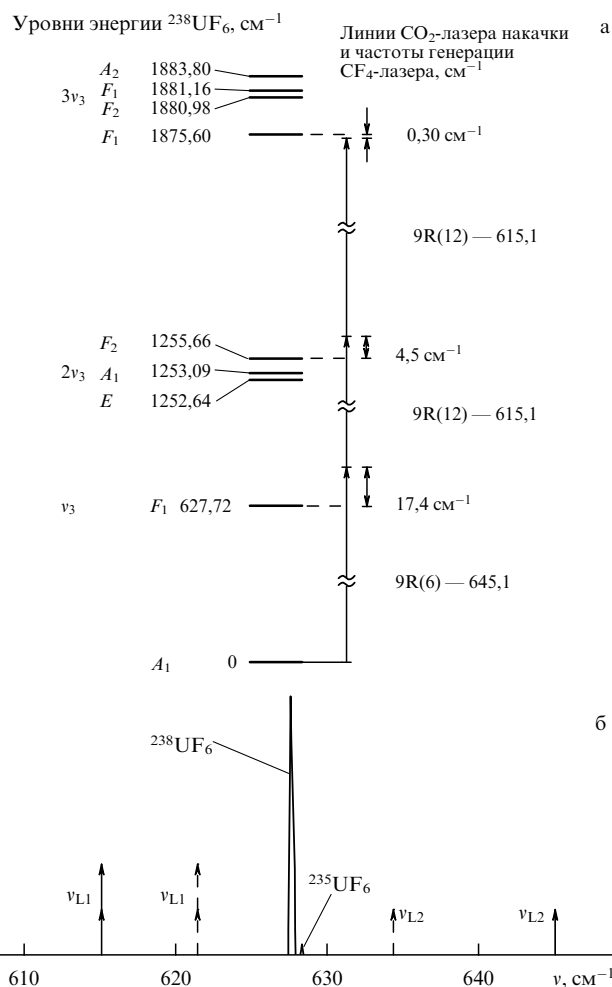


Рис. 4. (а) Схема резонансного трёхфотонного бихроматического возбуждения молекул $^{238}\text{UF}_6$ в состояние $3v_3 F_1$ ($\approx 1875,6 \text{ см}^{-1}$) излучением двух CF_4 -лазеров [91]. Энергии уровней моды v_3 молекул $^{238}\text{UF}_6$ взяты из работы [74]. (б) Частоты линий излучения двух CF_4 -лазеров (сплошные стрелки) и двух пара- H_2 -лазеров (штриховые стрелки), используемых для резонансного трёхфотонного бихроматического возбуждения молекул $^{238}\text{UF}_6$ в состоянии $3v_3 F_1$ ($\approx 1875,6 \text{ см}^{-1}$) (табл. 3, строка 1) и молекул $^{235}\text{UF}_6$ в состоянии $3v_3 F_1$ ($\approx 1877,4 \text{ см}^{-1}$) (табл. 4, строка 4), а также Q-ветвей полос линейного поглощения колебания v_3 молекул $^{238}\text{UF}_6$ и $^{235}\text{UF}_6$ в газодинамически охлажденном молекулярном потоке при $T \leq 50 \text{ K}$ [91]. (Q-ветви показаны качественно [22].)

Таблица 2. Схемы резонансного двухфотонного бихроматического возбуждения колебательных состояний $2\nu_3$ молекул $^{238}\text{UF}_6$ и $^{235}\text{UF}_6$ ИК-излучением двух пара- H_2 -лазеров [90]. При стимулированном комбинационном рассеянии на вращательных уровнях молекул пара-водорода частота генерации CO_2 -лазера уменьшается на величину $354,33 \text{ см}^{-1}$ [28]

Молекула	Возбуждаемое состояние и его частота, см^{-1}	Частота пара- H_2 -лазера-1 ν_{L1} , см^{-1}	Линия и частота CO_2 -лазера-1 накачки, см^{-1}	Частота пара- H_2 -лазера-2 ν_{L2} , см^{-1}	Линия и частота CO_2 -лазера-2 накачки, см^{-1}	Частотная отстройка в конечном состоянии, $\Delta\nu_{\text{fin}} = 2\nu_3 - (\nu_{L1} + \nu_{L2})$, см^{-1}
$^{238}\text{UF}_6$	$2\nu_3 E$ (1252,84)	621,63	10R(20), 975,93	631,19	10R(36), 985,49	+0,02
$^{238}\text{UF}_6$	$2\nu_3 A_1$ (1253,09)	622,91	10R(22), 977,21	630,08	10R(34), 984,38	+0,10
$^{238}\text{UF}_6$	$2\nu_3 F_2$ (1255,66)	620,32	10R(18), 974,62	635,35	10R(44), 989,65	-0,01
$^{235}\text{UF}_6$	$2\nu_3 E$ (1254,05)	621,63	10R(20), 975,93	632,27	10R(38), 986,57	+0,15
$^{235}\text{UF}_6$	$2\nu_3 E$ (1254,05)	622,91	10R(22), 977,21	631,19	10R(36), 985,49	-0,05
$^{235}\text{UF}_6$	$2\nu_3 A_1$ (1254,30)	618,96	10R(16), 973,29	635,35	10R(44), 989,65	-0,01
$^{235}\text{UF}_6$	$2\nu_3 A_1$ (1254,30)	624,17	10R(24), 978,47	630,08	10R(34), 984,38	+0,05
$^{235}\text{UF}_6$	$2\nu_3 F_2$ (1256,87)	621,63	10R(20), 975,93	635,35	10R(44), 989,65	-0,11

Таблица 3. Схемы резонансного трёхфотонного бихроматического возбуждения колебательных состояний $3\nu_3$ молекул $^{238}\text{UF}_6$ и $^{235}\text{UF}_6$ ИК-излучением двух CF_4 -лазеров [91]

Молекула	Возбуждаемое состояние и его частота, см^{-1}	Частота CF_4 -лазера-1 ν_{L1} , см^{-1}	Линия и частота CO_2 -лазера-1 накачки, см^{-1}	Частота CF_4 -лазера-2 ν_{L2} , см^{-1}	Линия и частота CO_2 -лазера-2 накачки, см^{-1}	Частотная отстройка в конечном состоянии, $\Delta\nu_{\text{fin}} = 3\nu_3 - (2\nu_{L1} + \nu_{L2})$, см^{-1}
$^{238}\text{UF}_6$	$3\nu_3 F_1$ (1875,60)	615,1	9R(12), 1073,28	645,1	9R(6), 1058,95	+0,30
$^{238}\text{UF}_6$	$3\nu_3 F_2$ (1880,98)	631,4	9R(22), 1079,85	618,2	9R(10), 1071,90	-0,02
$^{238}\text{UF}_6$	$3\nu_3 F_1$ (1881,16)	618,2	9R(10), 1071,90	645,1	9P(6), 1058,96	-0,34
$^{235}\text{UF}_6$	$3\nu_3 F_1$ (1877,41)	618,2	9R(10), 1071,90	640,9	9R(16), 1075,99	+0,11
$^{235}\text{UF}_6$	$3\nu_3 F_1$ (1877,41)	631,4	9R(22), 1079,85	615,1	9R(12), 1073,28	-0,49
$^{235}\text{UF}_6$	$3\nu_3 F_2$ (1882,78)	615,1	9R(12), 1073,28	652,2	9P(10), 1055,63	+0,38

Таблица 4. Схемы резонансного трёхфотонного бихроматического возбуждения колебательных состояний $3\nu_3$ молекул $^{238}\text{UF}_6$ и $^{235}\text{UF}_6$ ИК-излучением двух пара- H_2 -лазеров [91]

Молекула	Возбуждаемое состояние и его частота, см^{-1}	Частота пара- H_2 -лазера-1 ν_{L1} , см^{-1}	Линия и частота CO_2 -лазера-1 накачки, см^{-1}	Частота пара- H_2 -лазера-2 ν_{L2} , см^{-1}	Линия и частота CO_2 -лазера-2 накачки, см^{-1}	Частотная отстройка в конечном состоянии, $\Delta\nu_{\text{fin}} = 3\nu_3 - (2\nu_{L1} + \nu_{L2})$, см^{-1}
$^{238}\text{UF}_6$	$3\nu_3 F_1$ (1875,60)	621,60	10R(20), 975,93	632,24	10R(38), 986,57	+0,16
$^{238}\text{UF}_6$	$3\nu_3 F_2$ (1880,98)	622,88	10R(22), 977,21	635,32	10R(44), 989,65	-0,10
$^{238}\text{UF}_6$	$3\nu_3 F_1$ (1881,16)	622,88	10R(22), 977,21	635,32	10R(44), 989,65	+0,08
$^{235}\text{UF}_6$	$3\nu_3 F_1$ (1877,41)	621,60	10R(20), 975,93	634,32	10R(42), 988,65	-0,11
$^{235}\text{UF}_6$	$3\nu_3 F_2$ (1882,79)	631,16	10R(36), 985,49	620,29	10R(18), 974,62	+0,18
$^{235}\text{UF}_6$	$3\nu_3 A_2$ (1885,61)	626,58	10R(28), 980,91	632,24	10R(38), 986,57	+0,21

Отметим, что для некоторых схем возбуждения состояний $2\nu_3 \text{ UF}_6$ реализуется возможность резонансного заселения теми же лазерными импульсами состояний $4\nu_3 \text{ UF}_6$. Так, в схеме, показанной в табл. 1, строка 1, реализуется резонансное возбуждение молекул $^{238}\text{UF}_6$ в состояние $4\nu_3 E$ ($\approx 2506,60 \text{ см}^{-1}$) с частотной отстройкой в конечном состоянии $+0,4 \text{ см}^{-1}$. В случае схемы, показанной в табл. 1, строка 5, реализуется возможность возбуждения молекул $^{235}\text{UF}_6$ в состояние $4\nu_3 A_1$ ($\approx 2509,29 \text{ см}^{-1}$) и в состояние $4\nu_3 E$ ($\approx 2509,02 \text{ см}^{-1}$) с частотными отстройками в конечном состоянии соответственно $+0,09 \text{ см}^{-1}$ и $-0,18 \text{ см}^{-1}$. Реализация такой воз-

можности является положительным фактором, поскольку при этом происходит [88, 89] значительно более эффективное возбуждение молекул в высокие колебательные состояния.

4.3. Резонансное трёхфотонное возбуждение состояний $3\nu_3$ молекул $^{238}\text{UF}_6$ и $^{235}\text{UF}_6$

Бихроматическим излучением двух ИК-лазеров можно осуществить также эффективное возбуждение колебательных состояний $3\nu_3$ молекул UF_6 . В работах [91, 92] выполнен анализ и предложены конкретные схемы изотопно-селективного трёхфотонного заселения оберто-

ных колебательных состояний $3\nu_3 F_1$, $3\nu_3 F_2$ и $3\nu_3 A_2$ молекул $^{238}\text{UF}_6$ и $^{235}\text{UF}_6$ излучением двух CF_4 -лазеров, а также двух пара- H_2 -лазеров. Рассмотрим основные результаты этих работ. На рисунке 4а приведена схема заселения колебательного состояния $3\nu_3 F_1$ молекул $^{238}\text{UF}_6$ ($\approx 1875,6 \text{ см}^{-1}$ [74]) излучением двух CF_4 -лазеров, работающих соответственно на частотах $\nu_{L1} \approx 615,1 \text{ см}^{-1}$ и $\nu_{L2} \approx 645,1 \text{ см}^{-1}$. Трёхфотонное бихроматическое возбуждение указанного уровня $3\nu_3 F_1$ реализуется с отстройкой по конечному состоянию $\Delta\nu_{\text{fin}} \approx +0,3 \text{ см}^{-1}$ ($2\nu_{L1} + \nu_{L2} = 1875,3 \text{ см}^{-1}$). На рисунке 4б для данного примера приведены частоты линий генерации CF_4 -лазеров и Q-ветви полос линейного поглощения на основных частотах колебания ν_3 молекул $^{238}\text{UF}_6$ и $^{235}\text{UF}_6$ [91]. Частоты генерации пара- H_2 -лазеров для одной из схем возбуждения (см. ниже) отмечены штриховыми стрелками.

Отметим, что указанные частоты лазеров ни по отдельности, ни попарно не находятся в резонансе с низколежащими переходами молекул UF_6 [74]. 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 только через резонансный канал, т.е. через состояние $3\nu_3 F_1$. Дальнейшее возбуждение и диссоциация возбужденных молекул возможны, ввиду высокой плотности колебательных состояний молекул $^{238}\text{UF}_6$, преимущественно за счёт поглощения фотонов из лазера, имеющего более низкую частоту $\nu_{L1} \approx 615,1 \text{ см}^{-1}$, поскольку она находится в более хорошем резонансе с высоколежащими колебательными переходами молекулы. Заметим, что в данном конкретном примере используемая для возбуждения состояния $3\nu_3 F_1$ $^{238}\text{UF}_6$ комбинация частот лазеров подходит также для дальнейшего резонансного возбуждения молекул из колебательного состояния $3\nu_3 F_1$ в состояние $6\nu_3 A_1$ ($\approx 3750,92 \text{ см}^{-1}$ [74]) с отстройкой по частоте также всего лишь около $+0,3 \text{ см}^{-1}$.

В таблице 3 приведены параметры предложенных схем резонансного трёхфотонного бихроматического заселения колебательных состояний $3\nu_3$ $^{238}\text{UF}_6$ и $^{235}\text{UF}_6$ ИК-излучением двух CF_4 -лазеров. В первой строке таблицы приведена рассмотренная выше схема возбуждения состояния $3\nu_3 F_1$. Уровни энергии состояний $3\nu_3$ $^{235}\text{UF}_6$ определялись смещением уровней $3\nu_3$ $^{238}\text{UF}_6$ в высокочастотную сторону на величину изотопического сдвига для указанных молекул в состоянии $3\nu_3$ — на $\approx 1,81 \text{ см}^{-1}$.

В таблице 4 приведены параметры схем резонансного трёхфотонного бихроматического заселения колебательных состояний $3\nu_3$ $^{238}\text{UF}_6$ и $^{235}\text{UF}_6$ ИК-излучением двух пара- H_2 -лазеров. Частоты линий генерации пара- H_2 -лазеров для схемы возбуждения состояния $3\nu_3 F_1$ $^{235}\text{UF}_6$, приведённой в табл. 4 на строке 4, показаны на рис. 4б штриховыми стрелками. Отметим, что в схемах, показанных в табл. 4 на строках 2–4, для накачки пара- H_2 -лазеров используются линии 10R(42) и 10R(44) излучения CO_2 -лазеров, относительно далеко отстроенные от максимума полосы генерации 10R-ветви. Энергии излучения CO_2 -лазеров на этих линиях небольшие. В схемах, приведённых в табл. 4 на строках 1, 5 и 6, используются довольно интенсивные линии генерации CO_2 -лазеров, что позволяет получить также интенсивную генерацию пара- H_2 -лазеров.

5. Обсуждение схем изотопно-селективного заселения состояний $2\nu_3$ и $3\nu_3$ молекул $^{235}\text{UF}_6$ и $^{238}\text{UF}_6$

Проанализируем предложенные схемы бихроматического возбуждения молекул UF_6 в контексте получения более высоких значений селективности и выхода диссоциации. Следует отметить, что для оптимального изотопно-селективного возбуждения состояний $2\nu_3$ и $3\nu_3$ $^{238}\text{UF}_6$ необходимо обеспечить либо как можно более точный резонанс при возбуждении, либо возбуждение с небольшой положительной отстройкой суммарной частоты генерации лазеров от частоты возбуждаемого состояния. Например, при трёхфотонном возбуждении необходимо обеспечить условие $\Delta\nu_{\text{fin}} = 3\nu_3 - (2\nu_{L1} + \nu_{L2}) \geq 0$. А для оптимального изотопно-селективного возбуждения состояний $2\nu_3$ и $3\nu_3$ $^{238}\text{UF}_6$ необходимо обеспечить либо как можно более точный резонанс при возбуждении, либо возбуждение с небольшой отрицательной отстройкой суммарной частоты генерации лазеров от частоты возбуждаемого состояния ($\Delta\nu_{\text{fin}} \leq 0$). Это связано с тем, что даже в случае глубокого охлаждения UF_6 в газодинамических потоках сравнительно большая доля молекул находится [2, 22] на низколежащих колебательных уровнях: ν_6 ($\approx 143 \text{ см}^{-1}$), ν_4 ($\approx 187,5 \text{ см}^{-1}$), ν_5 ($\approx 201 \text{ см}^{-1}$), $2\nu_6$ ($\approx 286 \text{ см}^{-1}$). Так, например, при уже довольно низкой температуре $T \approx 70 \text{ К}$ населённость основного колебательного состояния составляет не более 75%, в то время как остальные молекулы распределены между низколежащими колебательными уровнями. И лишь при температуре $T \leq 50 \text{ К}$ населённость основного колебательного состояния UF_6 составляет $\geq 92\%$ [2, 22]. Частоты переходов молекул с низколежащих колебательных уровней незначительно смещены из-за межмодового ангармонизма в красную область относительно полосы поглощения молекул из основного колебательного состояния [2, 4]. Поэтому при сравнительно высоких температурах UF_6 наряду с резонансным возбуждением молекул из основного состояния возможно на тех же лазерных частотах возбуждение молекул из заселённых низколежащих колебательных состояний, что может привести к заметному уменьшению изотопической селективности процесса возбуждения верхних уровней.

В плане практической реализации рассматриваемого метода МЛПРИ для разделения изотопов урана методом диссоциации молекул резонансное возбуждение колебательных состояний $3\nu_3$ UF_6 излучением двух лазеров представляется более предпочтительным и целесообразным по сравнению с возбуждением состояний $2\nu_3$. В случае трёхфотонного бихроматического возбуждения состояний $3\nu_3$ UF_6 , как уже упоминалось выше, для тех же лазерных импульсов реализуются резонансные переходы в довольно высокие колебательные состояния $6\nu_3$ UF_6 . Дальнейшая диссоциация молекул из указанных состояний, которые находятся в области очень высокой плотности колебательных уровней (в области колебательного квазиконтинуума [4, 5]), будет эффективно происходить под действием тех же лазерных импульсов. Кроме того, как показано на примере молекул SF_6 в работах [83, 88, 89], в случае трёхфотонного возбуждения молекул при совпадении во времени всех трёх лазерных импульсов достигается более контрастное заселение возбуждаемого состояния $3\nu_3$, чем контрастность заселения состояния $2\nu_3$ при двухфотонном возбуждении. Это означает, что в

первом случае создаётся довольно узкое распределение колебательно-возбуждённых молекул SF_6 , в результате чего формируется более высокая селективность процесса их диссоциации [4, 89].

При применении методов МЛРИ урана обычно проводится изотопно-селективная диссоциация или возбуждение (в случае низкоэнергетических методов) молекул $^{235}\text{UF}_6$. В работах [90–92] рассмотрены схемы и параметры изотопно-селективного двух- и трёхфотонного возбуждения состояний $2\nu_3$ и $3\nu_3$ как для молекул $^{235}\text{UF}_6$, так и для молекул $^{238}\text{UF}_6$. Данные для молекул $^{238}\text{UF}_6$ полезны на стадии исследования эффективности и селективности предложенных схем возбуждения и диссоциации UF_6 .

Возможность реализации в предложенных схемах резонансного многофотонного заселения состояний $4\nu_3$ и $6\nu_3$ молекул UF_6 теми же лазерными импульсами, которые используются для изотопно-селективного возбуждения состояний $2\nu_3$ и $3\nu_3$, способствует увеличению эффективности и селективности возбуждения молекул. Это было экспериментально продемонстрировано в работах [83, 88, 89] на примере исследования резонансных переходов при многофотонном возбуждении молекул SF_6 .

6. Метод изотопно-селективного возбуждения и диссоциации молекул UF_6 с сенсбилизатором бихроматическим лазерным ИК-излучением в скачке уплотнения

Эффективность изотопно-селективного возбуждения молекул $^{235}\text{UF}_6$ и $^{238}\text{UF}_6$ в колебательные состояния $2\nu_3$ и $3\nu_3$ и их диссоциации из данных состояний можно существенно увеличить, если проводить их облучение в смеси с сенсбилизатором [92]. Недавно в работах [54, 93, 94] на примере изотопно-селективной диссоциации молекул CF_3Br и CF_2HCl , характеризующихся небольшими ($\leq 0,25 \text{ см}^{-1}$) изотопическими сдвигами (относительно изотопов брома и хлора) в спектрах ИК-поглощения, показано, что селективность и выход диссоциации молекул можно существенно увеличить, если их облучать в смеси с резонансно поглощающим газом. Происходит это за счёт того, что энергия возбуждения молекул резонансно поглощающего газа эффективно передаётся исследуемым молекулам. В работе [92] такой метод был положен в основу изотопно-селективной лазерной ИК-диссоциации молекул $^{235}\text{UF}_6$. Рассмотрим его более подробно.

Предлагаемый метод основан на использовании двух процессов: резонансного трёх- или двухфотонного возбуждения молекул UF_6 в состояния $3\nu_3$ или $2\nu_3$ бихроматическим ИК-излучением двух импульсных CF_4 - или пара- H_2 -лазеров [90, 91] и диссоциации колебательно-возбуждённых молекул UF_6 в среде с резонансно поглощающим излучением этих лазеров сенсбилизатором [55, 93, 94]. Возбуждение и диссоциацию молекул UF_6 предлагается проводить в неравновесных термодинамических условиях скачка уплотнения, который формируется перед твёрдой поверхностью при падении на неё интенсивного сверхзвукового газодинамически охлаждённого молекулярного потока [1, 2, 55, 95].

Для формирования молекулярного потока предложено использовать смесь молекул $\text{UF}_6/\text{SF}_6/\text{CH}_4$ при соотношении давлений примерно 1/3/10 [96]. Молекулы SF_6 используются как сенсбилизаторы, а молекулы CH_4 — как акцепторы атомов фтора, образующихся при

диссоциации молекул UF_6 и SF_6 . При указанном соотношении давлений используемых газов колебательная температура молекул UF_6 (а также молекул SF_6) в падающем на поверхность потоке, а также в скачке уплотнения будет составлять $T_{\text{vib}} \leq 100 \text{ К}$ [20, 96]. При такой колебательной температуре заселённость основного колебательного состояния молекул UF_6 составляет около 50% [2, 20], и молекулы UF_6 имеют сравнительно узкие ($\approx 7-8 \text{ см}^{-1}$ на полувысоте) полосы ИК-поглощения [2, 20, 68].

Используемые в качестве сенсбилизатора молекулы SF_6 резонансно возбуждаются теми же лазерными импульсами, что и молекулы UF_6 . Частота колебания моды ν_4 молекул SF_6 ($\approx 615 \text{ см}^{-1}$ [97, 98]) находится в очень хорошем резонансе с высоколежащими переходами колебательно-возбуждённых молекул $^{235}\text{UF}_6$. Это обеспечивает эффективную передачу энергии от возбуждённых CF_4 - или пара- H_2 -лазерами молекул SF_6 к колебательно-возбуждённым молекулам $^{235}\text{UF}_6$. В результате реализуется эффективная изотопно-селективная диссоциация молекул $^{235}\text{UF}_6$ за счёт радиационно-столкновительных процессов возбуждения [93, 94, 99, 100].

Молекулы SF_6 являются сравнительно нейтральными в химическом отношении и имеют довольно высокую энергию диссоциации. В качестве сенсбилизаторов для колебательного возбуждения и диссоциации молекул UF_6 они использовались во многих работах (см., например, [2, 101] и приведённые там ссылки). Однако в них молекулы SF_6 использовались для предварительного накопления колебательной энергии в результате их возбуждения импульсным излучением CO_2 -лазера. Молекулы SF_6 имеют интенсивную полосу поглощения в области 10,6 мкм (колебание ν_3 , частота $\approx 948 \text{ см}^{-1}$ [102]). В последующем запасённая молекулами SF_6 энергия через моду ν_4 , резонансную с модой ν_3 молекул UF_6 , передавалась последним, что и приводило к их возбуждению и диссоциации [2, 101].

В отличие от этого, в предложенном в работе [92] методе молекулы сенсбилизатора, а также молекулы $^{235}\text{UF}_6$ возбуждаются резонансным излучением CF_4 - или пара- H_2 -лазеров одновременно, что приводит к существенному увеличению эффективности диссоциации молекул $^{235}\text{UF}_6$ [93, 94, 99, 100]. Поскольку энергия диссоциации молекул UF_6 ($\approx 68 \text{ ккал моль}^{-1}$ [103]) намного меньше энергии диссоциации молекул SF_6 ($\approx 92 \text{ ккал моль}^{-1}$ [104]), в процессе облучения смеси диссоциация молекул UF_6 будет происходить при значительно меньшей колебательной температуре, чем диссоциация молекул SF_6 . В результате при небольшой плотности энергии возбуждающего лазерного излучения ($\Phi \leq 1,5-2 \text{ Дж см}^{-2}$) могут реализоваться условия, когда молекулы UF_6 будут диссоциировать, в то время как молекулы SF_6 не будут подвергаться диссоциации [93, 94, 99].

В газодинамически охлаждённом молекулярном потоке для поступательной, вращательной и колебательной температур многоатомных молекул реализуются [105] условия: $T_{1,\text{tr}} \leq T_{1,\text{rot}} \leq T_{1,\text{vib}}$. В скачке уплотнения [106] из-за разницы в скоростях поступательной, вращательной и колебательной релаксаций [107] реализуются обратные неравновесные условия, а именно: $T_{2,\text{tr}} \geq T_{2,\text{rot}} \geq T_{2,\text{vib}}$ [1, 2, 95]. При этом из-за большого времени колебательно-поступательной релаксации молекул (например, для SF_6 $p\tau_{\text{v-T}} \approx 150 \text{ мкс Торр}$ [108], для UF_6 $p\tau_{\text{v-T}} \approx 32 \text{ мкс Торр}$ [109]) колебательная температура молекул в скачке уплотнения в случае использования

импульсного потока разреженного газа может практически не отличаться от колебательной температуры молекул в падающем потоке ($T_{2,vib} \approx T_{1,vib}$), в то время как поступательная и вращательная температуры молекул в скачке уплотнения значительно выше, чем в невозмущённом потоке: $T_{2,tr} > T_{1,tr}$ и $T_{2,rot} > T_{1,rot}$. Таким образом, в скачке уплотнения создаются новые неравновесные условия, которые характеризуются тем, что колебательная температура молекул существенно меньше поступательной и вращательной температур.

В работе [110] (см. также обзор [95]) на примере молекул SF_6 было показано, что доминирующим фактором при формировании селективности диссоциации является колебательная, а не вращательная температура молекул. Это связано с тем, что колебательно охлаждённые молекулы (при $T_{vib} \leq 150$ К) даже при довольно высокой вращательной температуре ($T_{rot} \approx 570$ К) имеют (из-за отсутствия "горячих полос") более узкие спектры линейного, а также многофотонного поглощения, чем при комнатной температуре. Поэтому в колебательно "холодном" скачке уплотнения, даже в условиях высокой поступательной и вращательной температуры газа и наличия столкновений, которые уменьшают селективность процесса за счёт колебательно-колебательного $V-V$ обмена энергией между молекулами, реализуются довольно высокие селективности диссоциации молекул [110].

Преимущества процесса облучения молекул $^{235}UF_6$ с резонансно поглощающим излучением лазера сенсibilизатором SF_6 для увеличения эффективности их диссоциации поясняются рис. 5. На нём показаны полоса ИК-поглощения колебания ν_4 (частота 615 см^{-1} [98, 111]) резонансно поглощающих излучение SF_4 -лазера молекул SF_6 при температуре $T = 213$ К [111] и полоса ИК-поглощения колебания ν_3 ($\approx 627,72\text{ см}^{-1}$ [20, 68]) молекул UF_6 , охлаждённых в сверхзвуковой газодинамической струе в смеси с аргоном при температуре $T \leq 130$ К [96]. На рисунке 5 вертикальными стрелками показаны частотные положения линий генерации SF_4 -лазера (частоты — $618,2\text{ см}^{-1}$ и $640,9\text{ см}^{-1}$), на которых предполагается возбуждать молекулы $^{235}UF_6$ в состоянии $3\nu_3 F_1$ ($1877,41\text{ см}^{-1}$). Горизонтальными стрелками показано направление смещения полос поглощения молекул UF_6 и SF_6 в низкочастотную область при их колебательном возбуждении.

Резонансное возбуждение молекул $^{235}UF_6$ в колебательные состояния $2\nu_3$ и $3\nu_3$ бихроматическим лазерным ИК-излучением приводит из-за ангармонизма колебаний к смещению их полос ИК-поглощения в низкочастотную область, совпадающую с полосой ИК-поглощения колебания ν_4 молекул SF_6 . В результате для колебательно-возбуждённых молекул $^{235}UF_6$ и молекул SF_6 реализуется процесс эффективного резонансного радиационно-столкновительного возбуждения молекул [93, 94, 99], приводящий к существенному увеличению выхода диссоциации молекул $^{235}UF_6$. Возбуждённые лазером молекулы SF_6 за счёт процесса колебательно-колебательного $V-V$ обмена энергией передают поглощённую энергию молекулам $^{235}UF_6$, приводя к увеличению их выхода диссоциации. Поскольку процесс $V-V$ обмена энергией между молекулами происходит в условиях малых частотных отстроек между колебательными переходами молекул SF_6 и UF_6 , передача энергии между молекулами очень эффективна [101, 112]. Это приводит к увеличению эффективности диссоциации резонансно возбуждённых молекул $^{235}UF_6$.

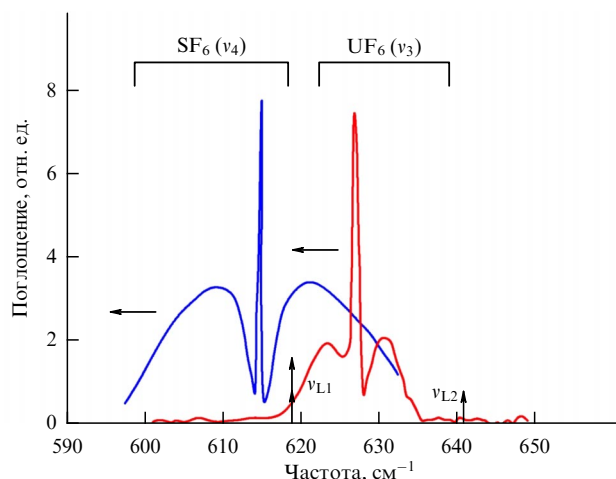


Рис. 5. Полоса ИК-поглощения колебания ν_4 молекул SF_6 при температуре $T = 213$ К [111] и полоса ИК-поглощения колебания ν_3 молекул UF_6 , охлаждённых в сверхзвуковой газодинамической струе в смеси с аргоном при температуре $T \leq 130$ К [96]. Вертикальными стрелками показаны частотные положения линий генерации SF_4 -лазера, на которых предполагается возбуждать молекулы $^{235}UF_6$ в состоянии $3\nu_3 F_1$ ($1877,41\text{ см}^{-1}$). Горизонтальными стрелками показано направление смещения полос поглощения молекул UF_6 и SF_6 в низкочастотную область при их колебательном возбуждении.

7. Заключение

Результаты экспериментальных исследований по резонансному многофотонному возбуждению состояний $2\nu_3$ и $3\nu_3$ молекул SF_6 многочастотным лазерным излучением импульсных CO_2 -лазеров показывают, что рассматриваемый метод является сравнительно простым и эффективным способом возбуждения молекул в высокие колебательные состояния и их диссоциации из таких состояний. Установлено, что этот метод позволяет заселять высокие колебательные уровни молекул более эффективно, чем методы одночастотного или последовательного двух- или трёхчастотного возбуждения молекул.

На основе спектроскопических данных об обертоновых состояниях колебания ν_3 молекул UF_6 и о частотах генерации SF_4 - и пара- H_2 -лазеров выполнен анализ и предложены схемы изотопно-селективного резонансного бихроматического возбуждения состояний $2\nu_3$ и $3\nu_3$ молекул $^{238}UF_6$ и $^{235}UF_6$ ИК-излучением двух SF_4 -лазеров, а также двух пара- H_2 -лазеров. Селективное возбуждение обертоновых колебательных состояний $2\nu_3$ и $3\nu_3$ молекул $^{238}UF_6$ и $^{235}UF_6$ бихроматическим излучением можно применить для лазерного разделения изотопов урана с использованием низкоэнергетических методов.

Предложен метод увеличения эффективности изотопно-селективной лазерной ИК-диссоциации молекул $^{235}UF_6$ в неравновесных термодинамических условиях скачка уплотнения, основанный на селективном возбуждении колебательных состояний $2\nu_3$ и $3\nu_3$ $^{235}UF_6$ бихроматическим излучением двух SF_4 - или пара- H_2 -лазеров и использовании резонансно поглощающего излучения этих лазеров сенсibilизатора — молекул SF_6 .

В случае применения для разделения изотопов урана метода ИК-многофотонной диссоциации молекул резонансное возбуждение колебательных состояний $3\nu_3$ UF_6 излучением двух лазеров с последующей их диссоциацией теми же лазерными импульсами является предпочтительным по сравнению с резонансным возбужде-

нием состояний $2\nu_3$ UF_6 . В первом случае можно реализовать более высокую селективность процесса возбуждения и диссоциации молекул. При использовании на практике низкоэнергетических методов МЛРИ урана в молекулярных потоках более эффективными могут быть схемы резонансного изотопно-селективного возбуждения состояний $2\nu_3$ молекул UF_6 бихроматическим излучением двух CF_4 - или пара- H_2 -лазеров.

Предложенные в рассмотренных работах методы и схемы резонансного изотопно-селективного бихроматического возбуждения колебательных состояний $2\nu_3$ и $3\nu_3$ молекул $^{235}UF_6$ и $^{238}UF_6$ могут составить основу для МЛРИ урана и представить большой интерес при разработке технологии лазерного разделения изотопов урана.

Автор выражает глубокую благодарность А.Н. Петину за полезные обсуждения и помощь в работе над рисунками. Работа выполнена в рамках Государственного задания FFUU-2022-0004.

Список литературы

- Макаров Г Н *УФН* **185** 717 (2015); Makarov G N *Phys. Usp.* **58** 670 (2015)
- Макаров Г Н *УФН* **192** 569 (2022); Makarov G N *Phys. Usp.* **65** 531 (2022)
- Letokhov V S *Nature* **277** 605 (1979)
- Bagratashvili V N et al. *Multiple Photon Infrared Laser Photochemistry and Photochemistry* (Chur: Harwood Acad. Publ., 1985)
- Cantrell C D (Ed.) *Multiple-Photon Excitation and Dissociation of Polyatomic Molecules* (Topics in Current Physics, Vol. 35) (Berlin: Springer-Verlag, 1986)
- Lyman J L, in *Laser Spectroscopy and its Applications* (Optical Engineering, Vol. 11, Eds L J Radziemski, R W Solarz, J A Paisner) (New York: M. Dekker, 1987) p. 417
- Eerkens J W (Ed) *Selected Papers on Laser Isotope Separation — Science and Technology* (SPIE Milestone Series, Vol. MS 113) (Bellingham, WA: SPIE Optical Engineering Press, 1995) pp. 108–147, 257–687
- Metz W D "Uranium enrichment: laser methods nearing full-scale test" *Science* **185** 602 (1974)
- Glass A J (Sci. Ed.), Cummings K L (Gen. Ed.) "Laser Program Annual Report — 1975", UCRL-50021-75 (Livermore, CA: Lawrence Livermore Laboratory, Univ. of California, 1975) pp. 1–55
- "Soviet Research on Laser Isotope Separation for Uranium Enrichment". Central Intelligence Agency. Freedom of Information Act Electronic Reading Room, <https://www.cia.gov/readingroom/document/0000680142>
- Guyot J et al. "Uranium enrichment activities: the SILVA program", Demande d'autorisation NIG No. 316, DCC, SACLAY, DPE, 28 June 1994, https://inis.iaea.org/collection/NCLCollectionStore/_Public/27/010/27010992.pdf?r=1&r=1
- Camarcat N et al. *Proc. SPIE* **1859** 14 (1993)
- Becker F S, Kompa K L *Nucl. Technol.* **58** 329 (1982)
- Bokhan P A et al. *Laser Isotope Separation in Atomic Vapor* (Berlin: Wiley-VCH, 2006)
- Radziemski L J, Solarz R V, Paisner J A (Eds) *Laser Spectroscopy and its Applications* Vol. 11 *Optical Engineering* (New York: M. Dekker, 1987) Ch. 3
- Григорьев И С, Лабозин В П, Песня А В, в кн. *Изотопы: свойства, получение, применение* Ч. 1 (Под ред. В Ю Баранова) (М.: Физматлит, 2005) с. 374
- Ramakoteswara Rao P *Current Sci.* **85** 615 (2003)
- Mathi P et al. *Proc. Natl. Acad. Sci. India A* (2015) <https://doi.org/10.1007/s40010-015-0249-6>
- Schneider K R "LIS: The View from Urenco", in *Proc. of the 6th Intern. Symp. on Advanced Nuclear Energy Research: Innovative Laser Technologies in Nuclear Energy, March 23–25, 1994, Mito, Ibaraki, Japan* (Mito, Japan: Japan Atomic Energy Research Institute, 1995) p. 280; https://inis.iaea.org/collection/NCLCollectionStore/_Public/27/014/27014297.pdf
- Jensen R J et al. *Laser Focus* **12** (5) 51 (1976)
- Jensen R J, Sullivan J A I, Finch F T *Separat. Sci. Technol.* **15** 509 (1980)
- Jensen R J, Judd O P, Sullivan J A *Los Alamos Sci.* (4) 2 (1982)
- Greenland P T *Contemp. Phys.* **31** 405 (1990)
- Fuß W "Laser isotope separation and proliferation risks", Report MPQ 346, February 2015 (Garching: Max-Planck-Institute für Quantenoptik, 2015); <https://www.mpg.de/5178012/MPQ346.pdf>
- Баранов В Ю и др., в кн. *Изотопы: свойства, получение, применение* Ч. 1 (Под ред. В Ю Баранова) (М.: Физматлит, 2005) с. 474
- Tiee J J, Wittig C *Appl. Phys. Lett.* **30** 420 (1977)
- Tiee J J, Fischer T A, Wittig C *Rev. Sci. Instrum.* **50** 598 (1979)
- Byer R L *IEEE J. Quantum Electron.* **12** 732 (1976)
- "Атомная энергия 2.0", <https://www.atomic-energy.ru/Megatons-to-Megawatts?>
- "Megatons to Megawatts program concludes", World Nuclear News, 11 December (2013); <https://www.world-nuclear-news.org/ENF-Megatons-to-Megawatts-program-concludes-1112134.html>
- Kim J, Eerkens J W, Miller W H *Nucl. Sci. Eng.* **156** 219 (2007)
- Kim J W et al. "Current status of the MLIS uranium enrichment process", in *Proc. of the Korean Nuclear Society Spring Meeting, Korea, May 22, 2009*
- Eerkens J W, Kim J *AIChE J.* **56** 2331 (2010)
- Ronander E, Strydom H J, Botha R L *Prima J. Phys.* **82** (1) 49 (2014)
- Ferguson C D, Boureston J "Focusing on Iran's Laser Enrichment Program", <https://www.iranwatch.org/sites/default/files/perspectives-Laser.pdf>
- Khlopkov A J. *Nonproliferation Rev.* **20** (1) 39 (2013)
- Ding H-B, Shen Z Y, Zhang C H *Proc. SPIE* **1859** 234 (1993)
- Xu B et al., in *National Meeting of the American Chem. Soc., Boston, MA, USA, 22–27 Apr. 1990, CONF-900402* (Washington, DC: American Chemical Soc., Division of Nucl. Chem. and Technol., 1990) p. 21, Paper NUCL 68; https://inis.iaea.org/search/search.aspx?orig_q=RN:21077879
- Li Y et al. *Opt. Commun.* **283** 2575 (2010)
- Eerkens J W et al., in *Conf. on Lasers and Electro-Optics, San Francisco, California, United States, 9–13 June 1986* (OSA Technical Digest) (Washington, DC: Optical Publ. Group, 1986) paper TUI4, <https://doi.org/10.1364/CLEO.1986.TUI4>
- Gornwitz M "The South Korean Laser Isotope Separation Experience", <https://isis-online.org/isis-reports/detail/the-south-korean-laser-isotope-separation-experience-1/10>
- Апатин В М и др. *ЖЭТФ* **152** 627 (2017); Apatin V M et al. *J. Exp. Theor. Phys.* **125** 531 (2017)
- Апатин В М и др. *Квантовая электроника* **48** 157 (2018); Apatin V M et al. *Quantum Electron.* **48** 157 (2018)
- Апатин В М и др. *ЖЭТФ* **154** 287 (2018); Apatin V M et al. *J. Exp. Theor. Phys.* **127** 244 (2018)
- Макаров Г Н, Огурок Н-Д Д, Петин А Н *Квантовая электроника* **48** 667 (2018); Makarov G N, Ogurok N-D D, Petin A N *Quantum Electron.* **48** 667 (2018)
- Lokhman V N et al. *Laser Phys.* **28** 105703 (2018)
- Лохман В Н и др. *ЖЭТФ* **155** 216 (2019); Lokhman V N et al. *J. Exp. Theor. Phys.* **128** 188 (2019)
- Петин А Н, Макаров Г Н *Квантовая электроника* **49** 593 (2019); Petin A N, Makarov G N *Quantum Electron.* **49** 593 (2019)
- Апатин В М и др. *Оптика и спектроскоп.* **127** 66 (2019); Apatin V M et al. *Opt. Spectrosc.* **127** 61 (2019)
- Макаров Г Н *УФН* **187** 241 (2017); Makarov G N *Phys. Usp.* **60** 227 (2017)
- Макаров Г Н *УФН* **190** 264 (2020); Makarov G N *Phys. Usp.* **63** 245 (2020)
- Makarov G N, Petin A N *Chem. Phys. Lett.* **323** 345 (2000)
- Makarov G N, Petin A N *Chem. Phys.* **266** 125 (2001)
- Макаров Г Н, Петин А Н *Письма в ЖЭТФ* **111** 361 (2020); Makarov G N, Petin A N *JETP Lett.* **111** 325 (2020)
- Макаров Г Н, Петин А Н *ЖЭТФ* **159** 281 (2021); Makarov G N, Petin A N *J. Exp. Theor. Phys.* **132** 233 (2021)
- Silex Systems Ltd, <https://www.silex.com.au>
- Silex: History, <https://www.silex.com.au/about/history#sthash.ayd9oZyC.dpuf>
- SILEX Process, https://www.chemeurope.com/en/encyclopedia/Silex_Process.html
- SILEX Uranium Enrichment, SILEX Annual Report 2020, <https://www.silex.com.au/investors/reports/>
- Lyman J L "Enrichment separative capacity for SILEX", Report LA-UR-05-3786 (Los Alamos, NM: Los Alamos National Laboratory, 2005)
- Грасюк А З, Летохов В С, Лобко В В *Квантовая электроника* **7** 2261 (1980); Grasyuk A Z, Letokhov V S, Lobko V V *Sov. J. Quantum Electron.* **10** 1317 (1980)
- Grasiuk A Z, Letokhov V S, Lobko V V *Prog. Quantum Electron.* **6** 245 (1980)

63. Баранов В Ю и др. *Квантовая электроника* **7** 87 (1980); Baranov V Yu et al. *Sov. J. Quantum Electron.* **10** 47 (1980)
64. Gupta P K, Mehendale S C *Hyperfine Interactions* **37** 243 (1987)
65. McDowell R S et al. *Opt. Lett.* **4** 274 (1979)
66. Patterson C, McDowell R, Nereson N *IEEE J. Quantum Electron.* **16** 1164 (1980)
67. Алимпиев С С и др. *Квантовая электроника* **6** 553 (1979); Alimpiev S S et al. *Sov. J. Quantum Electron.* **9** 329 (1979)
68. Aldridge J P et al. *J. Chem. Phys.* **83** 34 (1985)
69. Takami M et al. *Jpn. J. Appl. Phys.* **23** L88 (1984)
70. Алимпиев С С и др. *Квантовая электроника* **8** 623 (1981); Alimpiev S S et al. *Sov. J. Quantum Electron.* **11** 375 (1981)
71. Takeuchi K et al. *J. Nucl. Sci. Technol.* **26** 301 (1989)
72. Okada Y et al. *Appl. Phys. B* **62** 77 (1996)
73. Laguna G A et al. *Chem. Phys. Lett.* **75** 357 (1980)
74. Krohn B J et al. *J. Mol. Spectrosc.* **132** 285 (1988)
75. Budilova O V et al. *Opt. Commun.* **345** 163 (2015)
76. Baranov I Y, Koptev A V *Proc. SPIE* **7915** 7915F (2011)
77. Летохов В С, Чеботаев В П *Принципы нелинейной лазерной спектроскопии* (М.: Наука, 1975); Letokhov V S, Chebotayev V P *Nonlinear Laser Spectroscopy* (Berlin: Springer-Verlag, 1977)
78. Barch W E, Fetterman H R, Schlossberg H R *Opt. Commun.* **15** 358 (1975)
79. Miller R E *J. Phys. Chem.* **90** 3301 (1986)
80. Макаров Г Н *УФН* **180** 185 (2010); Makarov G N *Phys. Usp.* **53** 179 (2010)
81. Patterson C W, Krohn B J, Pine A S *Opt. Lett.* **6** 39 (1981)
82. Алимпиев С С и др. *Квантовая электроника* **12** 434 (1985); Alimpiev S S et al. *Sov. J. Quantum Electron.* **15** 289 (1985)
83. Apatin V M, Lohman V N, Makarov G N *Laser Chem.* **5** 196208 (1985)
84. Алимпиев С С и др. *Квантовая электроника* **10** 562 (1983); Alimpiev S S et al. *Sov. J. Quantum Electron.* **13** 331 (1983)
85. McDowell R S, Goldblatt M *Inorg. Chem.* **10** 625 (1971)
86. McDowell R S et al. *J. Chem. Phys.* **69** 1513 (1978)
87. Апатин В М, Макаров Г Н *ЖЭТФ* **84** 15 (1983); Apatin V M, Makarov G N *Sov. Phys. JETP* **57** 8 (1983)
88. Апатин В М, Лохман В Н, Макаров Г Н *Оптика и спектроск.* **63** 762 (1987); Apatin V M, Lohman V N, Makarov G N *Opt. Spectrosc.* **63** 452 (1987)
89. Макаров Г Н *УФН* **175** 41 (2005); Makarov G N *Phys. Usp.* **48** 37 (2005)
90. Макаров Г Н *ЖЭТФ* **160** 786 (2021); Makarov G N *J. Exp. Theor. Phys.* **133** 669 (2021)
91. Макаров Г Н *Квантовая электроника* **51** 643 (2021); Makarov G N *Quantum Electron.* **51** 643 (2021)
92. Макаров Г Н *Письма в ЖЭТФ* **115** 703 (2022); Makarov G N *JETP Lett.* **115** 660 (2022)
93. Макаров Г Н, Петин А Н *Письма в ЖЭТФ* **112** 226 (2020); Makarov G N, Petin A N *JETP Lett.* **112** 213 (2020)
94. Макаров Г Н, Петин А Н *Квантовая электроника* **50** 1036 (2020); Makarov G N, Petin A N *Quantum Electron.* **50** 1036 (2020)
95. Макаров Г Н *УФН* **173** 913 (2003); Makarov G N *Phys. Usp.* **46** 889 (2003)
96. Okada Y et al. *J. Mol. Struct.* **410–411** 299 (1997)
97. Person W B, Kim K C *J. Chem. Phys.* **69** 1764 (1978)
98. Kim K C et al. *J. Mol. Spectrosc.* **76** 322 (1979)
99. Макаров Г Н, Петин А Н *Письма в ЖЭТФ* **115** 292 (2022); Makarov G N, Petin A N *JETP Lett.* **115** 256 (2022)
100. Лаптев В Б, Макаров Г Н, Петин А Н, Рябов Е А *ЖЭТФ* **162** 60 (2022); Laptev V B, Makarov G N, Petin A N, Ryabov E A *J. Exp. Theor. Phys.* **135** 48 (2022)
101. Karve R S et al. *Appl. Phys. B* **53** 108 (1991)
102. Kim K, McDowell R S, King W T *J. Chem. Phys.* **73** 36 (1980)
103. Hildenbrand D J. *Chem. Phys.* **66** 4788 (1977)
104. Benson S W *Chem. Rev.* **78** 23 (1978)
105. Anderson J B, in *Molecular Beams and Low Density Gasdynamics* (Gasdynamics, Vol. 4, Ed. P P Wegener) (New York: M. Dekker, 1974)
106. Зельдович Я Б, Райзер Ю П *Физика ударных волн и высокотемпературных гидродинамических явлений* (М.: Наука, 1966); Пер. на англ. яз.: Zel'dovich Ya B, Raizer Yu P *Physics Of Shock Waves And High-Temperature Hydrodynamic Phenomena* (New York: Academic Press, 1966)
107. Ступоченко Е В, Лосев С А, Осипов А И *Релаксационные процессы в ударных волнах* (М.: Наука, 1965); Пер. на англ. яз.: Stupochenko Ye V, Losev S A, Osipov A I *Relaxation in Shock Waves* (New York: Springer-Verlag, 1967)
108. Steinfeld J I et al. *J. Chem. Phys.* **52** 5421 (1970)
109. Bass H E et al. *J. Chem. Phys.* **67** 1136 (1977)
110. Апатин В М и др. *Оптика и спектроск.* **91** 910 (2001); Apatin V M et al. *Opt. Spectrosc.* **91** 852 (2001)
111. Boudon V, Pierre G, Bürger H J. *Mol. Spectrosc.* **205** 304 (2001)
112. Mahan B H *J. Chem. Phys.* **46** 98 (1967)

New approaches to molecular laser separation of uranium isotopes

G.N. Makarov

Institute of Spectroscopy, Russian Academy of Sciences, ul. Fizicheskaya 5, 108840 Troitsk, Moscow, Russian Federation

E-mail: gmakarov@isan.troitsk.ru

Significant interest in the laser separation of uranium isotopes at the turn of the century stimulated the search for and development of a number of methods and approaches that use both atomic and molecular mechanisms of isotope separation. Effective laser methods for the separation of uranium isotopes are currently under active development in many countries. New approaches to the molecular laser isotope separation (MLIS) of uranium are reviewed. They are based on resonant isotope-selective multiphoton excitation of high vibrational states ($2\nu_3$ and $3\nu_3$) of $^{235}\text{UF}_6$ and $^{238}\text{UF}_6$ molecules in gas-dynamically cooled molecular flows by bichromatic IR laser radiation and the subsequent dissociation of the excited molecules by the same laser pulses. The foundations of these approaches are analyzed. The results of experiments on two- and three-photon excitation of SF_6 molecules, whose spectroscopic properties are similar to those of UF_6 molecules, into the $2\nu_3$ and $3\nu_3$ vibrational states by, respectively, two- and three-frequency radiation of pulsed CO_2 lasers are presented and discussed. Specific setups and parameters of resonant two- and three-photon isotope-selective excitation of $^{235}\text{UF}_6$ and $^{238}\text{UF}_6$ molecules into the $2\nu_3$ and $3\nu_3$ vibrational states by bichromatic IR radiation from two pulsed CF_4 lasers and two para- H_2 lasers with emissions in the 16- μm region are proposed and analyzed. A method is considered for the isotope-selective excitation and dissociation of UF_6 molecules in a mixture with a sensitizer (SF_6 molecules) under nonequilibrium thermodynamic conditions of a shock wave. Low-energy MLIS methods for uranium based on the proposed approaches are shown to be feasible.

Keywords: atoms, molecules, clusters, uranium, molecular and cluster beams, laser spectroscopy, laser-induced selective processes in molecules and clusters, laser separation of uranium isotopes, laser physics

PACS numbers: 07.77.Gx, **28.60.+s**, **33.80.-b**, **36.40.-c**, **42.62.-b**, 42.62.Fi, 82.50.Bc

Bibliography — 112 references

Uspekhi Fizicheskikh Nauk **194** (1) 48–59 (2024)

DOI: <https://doi.org/10.3367/UFNr.2023.02.039325>

Received 19 January 2023, revised 17 February 2023

Physics – Uspekhi **67** (1) (2024)

DOI: <https://doi.org/10.3367/UFNe.2023.02.039325>