

# СХЕМЫ И ПАРАМЕТРЫ РЕЗОНАНСНОГО ДВУХФОТОННОГО ВОЗБУЖДЕНИЯ КОЛЕБАТЕЛЬНЫХ СОСТОЯНИЙ $2\nu_3$ МОЛЕКУЛ $\text{UF}_6$ БИХРОМАТИЧЕСКИМ ЛАЗЕРНЫМ ИК-ИЗЛУЧЕНИЕМ

*Г. Н. Макаров\**

Институт спектроскопии Российской академии наук  
108840, Троицк, Москва, Россия

Поступила в редакцию 17 июня 2021 г.,

после переработки 17 июня 2021 г.

Принята к публикации 6 августа 2021 г.

На основе спектроскопических данных об обертонных состояниях колебания  $\nu_3$  молекул  $\text{UF}_6$  и о частотах генерации  $\text{CF}_4$ - и пара- $\text{H}_2$ -лазеров, генерирующих в области 16 мкм, выполнен анализ и рассмотрена возможность резонансного двухфотонного изотопно-селективного возбуждения колебательных состояний  $2\nu_3$  молекул  $\text{UF}_6$  бихроматическим ИК-излучением этих лазеров. Предложены схемы и приведены параметры возбуждения молекул  $^{238}\text{UF}_6$  и  $^{235}\text{UF}_6$  в состояния  $2\nu_3$  двумя лазерами, частоты излучений которых отстроены на  $3.5\text{--}13 \text{ см}^{-1}$  от  $Q$ -ветвей спектров линейного поглощения колебания  $\nu_3$  молекул  $\text{UF}_6$  в газодинамически охлажденном молекулярном потоке. В то же время сумма частот первого и второго лазеров ( $\nu_{L1} + \nu_{L2}$ ) равна частоте колебательного перехода  $0\nu_3 \rightarrow 2\nu_3$  молекул  $\text{UF}_6$ . При одновременном воздействии на молекулы обоими лазерными импульсами реализуется возможность селективного возбуждения молекул  $\text{UF}_6$  из основного колебательного состояния  $0\nu_3$  в возбужденные состояния  $2\nu_3$ . Изотопно-селективное возбуждение обертонных колебательных состояний  $2\nu_3$  молекул  $^{238}\text{UF}_6$  и  $^{235}\text{UF}_6$  предложенным способом может составить основу для процесса лазерного разделения изотопов урана с использованием низкоэнергетических методов.

DOI: 10.31857/S0044451021120038

## 1. ВВЕДЕНИЕ

Большинство существовавших в конце прошлого века проектов по лазерному разделению изотопов урана по ряду причин было закрыто [1, 2]. Во многих случаях это объяснялось экономическими факторами. Считалось, что на том этапе развития лазерной технологии создание модулей промышленного типа для лазерного разделения изотопов урана нерентабельно [3]. В то же время в ряде проектов было показано [2, 4–7], что экономическая эффективность лазерных методов обогащения урана сопоставима с таковой наиболее продвинутых центрифугальных методов. Основная причина закрытия проектов по лазерному разделению изотопов урана — политico-экономическая. Она была результатом заключенного в 1993 году между Россией и США межправи-

тельственного соглашения ВОУ–НОУ (высокообогащенный уран–низкообогащенный уран) (Программа «Мегатонны в мегаватты» — Megatons to Megawatts Program) [8, 9]. Это соглашение действовало 20 лет (до 2013 года). Согласно ему США покупали у России низкообогащенный уран, вырабатываемый из оружейного урана, для своих атомных электростанций. Последствием этого в США стало замедление развития технологий по разделению изотопов урана. Вместе с тем во многих странах (в США, Австралии, Японии, Южной Корее, Индии, Иране, ЮАР) исследования по лазерному разделению изотопов урана проводятся и сегодня [1, 2, 10–15].

В настоящее время эти исследования направлены в основном на разработку низкоэнергетических методов молекулярного лазерного разделения изотопов (МЛРИ) урана [1, 2, 16–22]. Проводится также исследование альтернативных методов [1, 2, 23–26]. Среди низкоэнергетических методов МЛРИ наиболее перспективными считаются [1, 2, 16–22] метод

\* E-mail: gmakarov@isan.troitsk.ru

изотопно-селективного подавления кластеризации молекул и метод изотопно-селективной диссоциации небольших слабосвязанных ван-дер-ваальсовых кластеров (в частности, димеров). Вероятно, именно эти методы положены в основу разрабатываемой сегодня в США и Австралии лазерной технологии обогащения урана SILEX (separation of isotopes by laser excitation) [27–30] (см. также обзоры [1, 2, 22]).

В ранних исследованиях МЛРИ урана методом селективной инфракрасной многофотонной ИК-диссоциации молекул  $\text{UF}_6$  использовались генерирующий в области 16 мкм оптически-накачиваемый излучением мощного  $\text{CO}_2$ -лазера молекулярный  $\text{CF}_4$ -лазер [31, 32] и основанный на смещении частоты  $\text{CO}_2$ -лазера в область 16 мкм за счет стимулированного комбинационного (рамановского) рассеяния в параводороде пара- $\text{H}_2$ -лазер [33].

$\text{CF}_4$ -лазер излучает в области частот 612–650 см<sup>-1</sup> [34–37] и имеет более ста линий генерации [34, 35]. В основе работы пара- $\text{H}_2$ -лазера лежит процесс вынужденного комбинационного рассеяния излучения мощного  $\text{CO}_2$ -лазера на вращательных переходах молекулярного водорода. При таком неупругом рассеянии частота излучения  $\text{CO}_2$ -лазера уменьшается на величину вращательного кванта молекулы  $\text{H}_2$  (около 354.33 см<sup>-1</sup>) и попадает в 16-мкм диапазон [33]. Перестройка частоты излучения  $\text{CO}_2$ -лазера автоматически ведет к перестройке частоты излучения пара- $\text{H}_2$ -лазера.

Существенными недостатками как  $\text{CF}_4$ -лазера, так и пара- $\text{H}_2$ -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  $\nu_3$  молекул  $^{235}\text{UF}_6$  (в области 628.32 см<sup>-1</sup> [38, 39]). Поэтому с помощью  $\text{CF}_4$ -лазера не удалось реализовать изотопно-селективную диссоциацию молекул  $\text{UF}_6$ , хотя в целом ряде работ он использовался в экспериментах по двухчастотному возбуждению и диссоциации  $\text{UF}_6$  [2, 40]. Разделение изотопов урана со сравнительно высокой селективностью процесса ( $\alpha \geq 4$ ) было осуществлено в работах [41, 42] методом многофотонной ИК-диссоциации молекул  $\text{UF}_6$  с использованием пара- $\text{H}_2$ -лазеров.

В качестве другого подхода к МЛРИ урана рассматривается метод изотопно-селективного возбуждения состояния  $3\nu_3$  молекул  $^{235}\text{UF}_6$  [43, 44], в котором изотопический сдвиг составляет около 1.81 см<sup>-1</sup> [38, 39], излучением  $\text{CO}$ -лазера [15, 45–48]. В этом подходе используется химическая реакция колебательно-возбужденных молекул  $\text{UF}_6$  с моле-

кулами  $\text{HCl}$  [15, 45, 46]. Разделение изотопов урана происходит за счет различия в скоростях реакции колебательно-возбужденных и невозбужденных молекул  $\text{UF}_6$  с молекулами  $\text{HCl}$ . В работе [46] этим методом осуществлено разделение изотопов урана с селективностью  $\alpha = 1.2$ . Для этого подхода создаются мощные  $\text{CO}$ -лазеры [47, 48], генерирующие в области 5.3 мкм, которые планируется использовать для возбуждения молекул  $^{235}\text{UF}_6$ . Однако следует отметить, что эффективное возбуждение состояний  $3\nu_3$  молекул  $\text{UF}_6$  ИК-излучением с длиной волны 5.33 мкм проблематично из-за слабого поглощения молекул  $\text{UF}_6$  на колебательном переходе  $0\nu_3 \rightarrow 3\nu_3$ . Интегральное поглощение обратной полосы  $0\nu_3 \rightarrow 3\nu_3$  молекул  $\text{UF}_6$  ( $\Gamma_{0 \rightarrow 3} = 3.8 \cdot 10^{-2}$  км/моль) более чем на четыре порядка (примерно в  $1.8 \cdot 10^4$  раз) меньше интегрального поглощения основной полосы  $0\nu_3 \rightarrow 1\nu_3$   $\text{UF}_6$  ( $\Gamma_{0 \rightarrow 1} \approx 6.7 \cdot 10^2$  км/моль) [43].

Поэтому поиск альтернативных схем изотопно-селективного возбуждения высоких колебательных состояний молекул  $^{235}\text{UF}_6$  представляется важным и актуальным. Возбуждение молекул  $\text{UF}_6$  в высокие колебательные состояния можно использовать для разделения изотопов урана с применением низкоэнергетических методов, в основе которых лежат процессы с энергией активации не более 0.1–0.2 эВ [1, 2, 22]. 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  $\text{UF}_6\text{-Ar} \leq 0.1$  эВ [1, 2, 22]). В работе [49] рассмотрена возможность резонансного трехфотонного возбуждения колебательных состояний  $3\nu_3$  молекул  $\text{UF}_6$  бихроматическим излучением двух импульсных ИК-лазеров. В плане применения низкоэнергетических методов большой интерес представляет также возможность резонансного изотопно-селективного возбуждения колебательных состояний  $2\nu_3$  молекул  $\text{UF}_6$ , поскольку двухфотонное возбуждение высоких колебательных состояний молекул более эффективно по сравнению с трехфотонным возбуждением [50].

В настоящей работе приведены результаты подробного рассмотрения и анализа метода резонансного двухфотонного изотопно-селективного возбуждения колебательных состояний  $2\nu_3$  молекул  $^{238}\text{UF}_6$  и  $^{235}\text{UF}_6$  с помощью двух  $\text{CF}_4$ -лазеров, а также двух пара- $\text{H}_2$ -лазеров. Предложены конкретные схемы и приведены параметры возбуждения состояний  $2\nu_3$  молекул  $\text{UF}_6$ .

## 2. ОСНОВЫ МЕТОДА РЕЗОНАНСНОГО ДВУХФОТОННОГО БИХРОМАТИЧЕСКОГО ВОЗБУЖДЕНИЯ КОЛЕБАТЕЛЬНЫХ СОСТОЯНИЙ $2\nu_3$ МОЛЕКУЛ $\text{UF}_6$

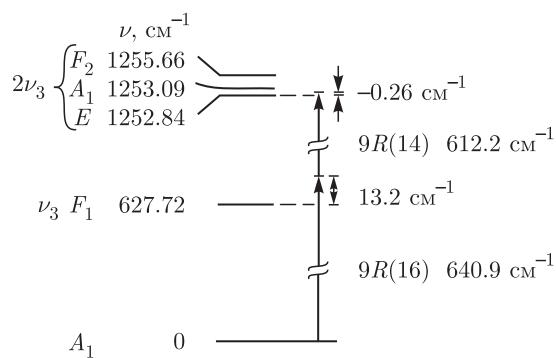
Многофотонное возбуждение высоких колебательных состояний молекул можно реализовать при когерентном воздействии нескольких полей, сумма частот которых удовлетворяет условию многофотонного резонанса [50]. Для резонансного возбуждения колебательных состояний  $2\nu_3$  молекул  $\text{UF}_6$  излучением двух импульсных ИК-лазеров необходимо, чтобы выполнялось следующее соотношение между частотами  $\nu_{1L}$  и  $\nu_{2L}$  излучения используемых лазеров и частотой колебания  $\nu_3$  возбуждаемого состояния молекулы  $\text{UF}_6$ :

$$\nu_{1L} + \nu_{2L} = 2\nu_3. \quad (1)$$

Эффективное возбуждение высоких колебательных состояний молекул за счет многофотонных процессов с использованием двух и трех  $\text{CO}_2$ -лазеров, генерирующих на разных частотах, было реализовано ранее в работах соответственно [51] и [52] на примере  $\text{SF}_6$ . В работе [51] возбуждалось состояние  $2\nu_3 A_1$  ( $\nu \approx 1889.0 \text{ cm}^{-1}$  [53]) молекул  $\text{SF}_6$  в импульсной газодинамической струе при одновременном воздействии на молекулы двух симметрично отстроенных от резонанса с переходом  $0\nu_3 \rightarrow 1\nu_3$   $\text{SF}_6$  импульсов  $\text{CO}_2$ -лазера. Показано [51], что таким способом через состояние  $2\nu_3 A_1$  можно возбудить из основного состояния около 30 % молекул  $\text{SF}_6$ . В работе [52] было реализовано резонансное возбуждение состояния  $3\nu_3 F_1$  ( $\nu \approx 2827.55 \text{ cm}^{-1}$  [53]) молекул  $\text{SF}_6$ , охлажденных в импульсной газодинамической струе, импульсами излучения трех дискретно перестраиваемых по частоте  $\text{CO}_2$ -лазеров. Установлено [52], что при совпадении во времени всех трех лазерных импульсов происходит эффективное возбуждение молекул  $\text{SF}_6$  через колебательное состояние  $3\nu_3 F_1$ . При этом молекулы возбуждались также в более высокие колебательные состояния.

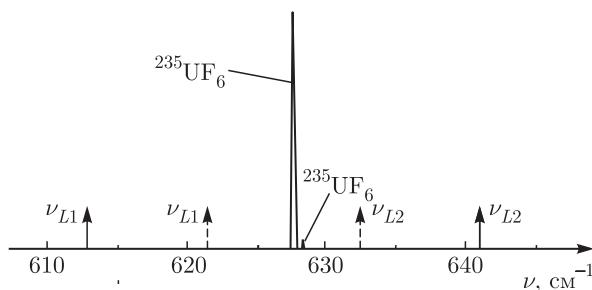
## 3. СХЕМЫ И ПАРАМЕТРЫ РЕЗОНАНСНОГО ИЗОТОПНО-СЕЛЕКТИВНОГО ДВУХФОТОННОГО БИХРОМАТИЧЕСКОГО ВОЗБУЖДЕНИЯ СОСТОЯНИЙ $2\nu_3$ МОЛЕКУЛ $\text{UF}_6$

В ходе выполнения проектов по МЛРИ урана была получена обширная и ценная спектроскопическая информация как о самой молекуле  $\text{UF}_6$ , так и



**Рис. 1.** Схема резонансного двухфотонного бихроматического возбуждения молекул  $^{238}\text{UF}_6$  в состояние  $2\nu_3 E$  ( $\nu \approx 1252.84 \text{ cm}^{-1}$ ) излучением двух  $\text{CF}_4$ -лазеров. Справа приведены линии  $\text{CO}_2$ -лазера и частоты генерации  $\text{CF}_4$ -лазера. Колебательные уровни моды  $\nu_3$  молекул  $^{238}\text{UF}_6$  взяты из работы [44]

о лазерах, используемых для возбуждения и диссоциации молекул  $\text{UF}_6$  [34–38, 44, 54, 55] (см. также обзор [2] и приведенные там ссылки). Полученные результаты дают возможность предсказывать схемы резонансного многофотонного возбуждения высоких колебательных состояний молекул  $\text{UF}_6$  излучением нескольких ИК-лазеров. В настоящей работе на основе анализа данных об уровнях энергии моды  $\nu_3$  молекул  $^{238}\text{UF}_6$  [44] и о частотах излучения  $\text{CF}_4$ -лазера [34, 35] и пары- $\text{H}_2$ -лазера [33] нами предлагаются схемы и приводятся параметры изотопно-селективного двухфотонного бихроматического возбуждения колебательных состояний  $2\nu_3$  молекул  $^{238}\text{UF}_6$  и  $^{235}\text{UF}_6$  излучением двух  $\text{CF}_4$ -лазеров, а также двух пары- $\text{H}_2$ -лазеров. При выборе схем для возбуждения молекул  $\text{UF}_6$  и анализе данных о частотах лазеров нами учитывались величины изотопического сдвига в ИК-спектрах поглощения колебания  $\nu_3$  молекул  $\text{UF}_6$ :  $\Delta_{is} \approx 0.604 \text{ cm}^{-1}$  [38, 39] в состоянии  $1\nu_3$  для молекул  $^{238}\text{UF}_6$  и  $^{235}\text{UF}_6$  и  $\Delta_{is} \approx 1.21 \text{ cm}^{-1}$  в состоянии  $2\nu_3$  молекул  $\text{UF}_6$ . При выборе оптимальных частот для возбуждения молекул нами рассматривались только наиболее интенсивные линии генерации как  $\text{CF}_4$ -лазеров [34, 35], так и  $\text{CO}_2$ -лазеров, которые применяются для накачки пары- $\text{H}_2$ -лазеров. В предложенных схемах возбуждения состояний  $2\nu_3$  молекул  $\text{UF}_6$  нет необходимости в дополнительной подстройке частоты лазеров для резонансного возбуждения молекул, поскольку отстройки суммарных частот излучений лазеров от частот возбуждаемых состояний незначительны (см. рис. 1 и табл. 1, 2).



**Рис. 2.** Частоты линий излучения двух  $\text{CF}_4$ -лазеров (сплошные стрелки) и двух пара- $\text{H}_2$ -лазеров (штриховые стрелки), используемых для резонансного двухфотонного бихроматического возбуждения молекул  $^{238}\text{UF}_6$  в состояние  $2\nu_3 E$  ( $\nu \approx 1252.84 \text{ см}^{-1}$ ) (табл. 1, строка 1) и молекул  $^{235}\text{UF}_6$  в состояние  $2\nu_3 E$  ( $\nu \approx 1254.05 \text{ см}^{-1}$ ) (табл. 2, строка 4), а также  $Q$ -ветвей колебания  $\nu_3$  молекул  $^{238}\text{UF}_6$  и  $^{235}\text{UF}_6$  в газодинамически охлажденном молекулярном потоке при  $T \leq 50 \text{ К}$  ( $Q$ -ветви показаны качественно [54])

С использованием двух ИК-лазеров можно осуществить эффективное изотопно-селективное возбуждение колебательных состояний  $2\nu_3$  молекул  $\text{UF}_6$  ( $\nu \approx 1253 \text{ см}^{-1}$  [44]). На рис. 1 представлена схема возбуждения колебательного состояния  $2\nu_3 E$  молекул  $^{238}\text{UF}_6$  ( $\nu \approx 1252.84 \text{ см}^{-1}$  [44]) излучением двух  $\text{CF}_4$ -лазеров, работающих на частотах соответственно  $\nu_{L1} \approx 612.2 \text{ см}^{-1}$  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 рис. 2 для данного примера приведены (сплошными стрелками) частоты линий генерации  $\text{CF}_4$ -лазеров и  $Q$ -ветви колебания  $\nu_3$  молекул  $^{238}\text{UF}_6$  и  $^{235}\text{UF}_6$  в газодинамически охлажденном молекулярном потоке. Ширины  $P$ - и  $R$ -ветвей (не приведены на рис. 2) спектра ИК-поглощения колебания  $\nu_3$  молекул  $\text{UF}_6$  при  $T \leq 50 \text{ К}$  составляют величину не более  $2 \text{ см}^{-1}$  [38].

В табл. 1 приведены параметры предложенных нами возможных схем резонансного двухфотонного бихроматического возбуждения колебательных состояний  $2\nu_3$  молекул  $^{238}\text{UF}_6$  и  $^{235}\text{UF}_6$  ИК-излучением двух  $\text{CF}_4$ -лазеров. Уровни энергии состояний  $2\nu_3$   $^{235}\text{UF}_6$  определялись нами путем смещения уровней  $2\nu_3$   $^{238}\text{UF}_6$  в высокочастотную сторону на величину изотопического сдвига для указанных молекул в состоянии  $2\nu_3$ , т. е. примерно на  $1.21 \text{ см}^{-1}$ .

В табл. 2 приведены параметры возможных схем резонансного двухфотонного бихроматического возбуждения колебательных состояний  $2\nu_3$  молекул  $^{238}\text{UF}_6$  и  $^{235}\text{UF}_6$  ИК-излучением двух

пара- $\text{H}_2$ -лазеров. Частоты линий генерации пара- $\text{H}_2$ -лазеров для возбуждения состояния  $2\nu_3 E$   $^{235}\text{UF}_6$  ( $\nu \approx 1254.05 \text{ см}^{-1}$ ) (см. табл. 2, строка 4) отмечены на рис. 2 штриховыми стрелками. Как видно из табл. 1 и 2, при применении обоих типов лазеров можно осуществить резонансное возбуждение состояний  $2\nu_3$  молекул  $^{238}\text{UF}_6$  и  $^{235}\text{UF}_6$  с небольшой частотной отстройкой в конечном состоянии, что способствует достижению высокой селективности процесса возбуждения молекул  $\text{UF}_6$ .

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  $4\nu_3 E$  ( $\nu \approx 2506.60 \text{ см}^{-1}$ ) 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  $4\nu_3 A1$  ( $\nu \approx 2509.29 \text{ см}^{-1}$ ) и в состояние  $4\nu_3 E$  ( $\nu \approx 2509.02 \text{ см}^{-1}$ ) с частотными отстройками в конечном состоянии соответственно  $+0.09 \text{ см}^{-1}$  и  $-0.18 \text{ см}^{-1}$ . Реализация такой возможности является положительным фактором, поскольку при этом происходит [56] значительно более эффективное возбуждение молекул в высокие колебательные состояния.

#### 4. ОБСУЖДЕНИЕ ПРЕДЛОЖЕННЫХ СХЕМ ИЗОТОПНО-СЕЛЕКТИВНОГО ВОЗБУЖДЕНИЯ ВЫСОКИХ КОЛЕБАТЕЛЬНЫХ СОСТОЯНИЙ МОЛЕКУЛ $\text{UF}_6$

Отметим, что для оптимального изотопно-селективного заселения состояний  $2\nu_3$  молекул  $^{238}\text{UF}_6$  необходимо обеспечить либо как можно более точный резонанс при возбуждении, либо возбуждение с небольшой положительной отстройкой суммарной частоты генерации лазеров от частоты возбуждаемого состояния ( $\Delta\nu_{fin} = 2\nu_3 - (\nu_{L1} + \nu_{L2}) > 0$ ); а для оптимального изотопно-селективного возбуждения состояний  $2\nu_3$  молекул  $^{235}\text{UF}_6$  — либо как можно более точный резонанс при возбуждении, либо возбуждение с небольшой отрицательной отстройкой суммарной частоты лазеров от частоты возбуждаемого состояния ( $\Delta\nu_{fin} < 0$ ). Это связано с тем, что даже в случае глубокого охлаждения  $\text{UF}_6$  в газодинамических потоках сравнительно большая доля

**Таблица 1.** Параметры возможных схем резонансного двухфотонного бихроматического возбуждения колебательных состояний  $2\nu_3$  молекул  $^{238}\text{UF}_6$  и  $^{235}\text{UF}_6$  ИК-излучением двух  $\text{CF}_4$ -лазеров

Молекула	Возбуждаемое состояние и его частота, $\text{см}^{-1}$	Частота $\text{CF}_4$ -лазера-1 $\nu_{L1}, \text{см}^{-1}$	Линия и частота, $\text{см}^{-1}$ $\text{CO}_2$ -лазера-1 накачки	Частота $\text{CF}_4$ -лазера-2 $\nu_{L2}, \text{см}^{-1}$	Линия и частота, $\text{см}^{-1}$ $\text{CO}_2$ -лазера-2 накачки	Частотная отстройка в конечном состоянии, $\Delta\nu_{fin} = 2\nu_3 - (\nu_{L1} + \nu_{L2})$ , $\text{см}^{-1}$
$^{238}\text{UF}_6$	$2\nu_3 E$ (1252.84)	612.2	9R(14), 1074.65	640.9	9R(16), 1075.99	-0.26
	$2\nu_3 A1$ (1253.09)	612.2	9R(14), 1074.65	640.9	9R(16), 1075.99	-0.01
	$2\nu_3 F2$ (1255.66)	612.2	9R(14), 1074.65	643.1	9R(20), 1078.59	+0.36
$^{235}\text{UF}_6$	$2\nu_3 E$ (1254.05)	612.2	9R(14), 1074.65	641.9	9R(18), 1077.30	-0.05
	$2\nu_3 A1$ (1254.30)	612.2	9R(14), 1074.65	642.4	9P(4), 1060.57	-0.30
	$2\nu_3 F2$ (1256.87)	615.1	9R(12), 1073.28	641.9	9R(18), 1077.30	-0.13

молекул находится [2, 54] на низколежащих колебательных уровнях [38]:

$$\nu_6(\nu \approx 143 \text{ см}^{-1}), \quad \nu_4(\nu \approx 187.5 \text{ см}^{-1}),$$

$$\nu_5(\nu \approx 201 \text{ см}^{-1}), \quad 2\nu_6(\nu \approx 286 \text{ см}^{-1}).$$

Так, например, при уже довольно низкой температуре ( $T \approx 70$  К) населенность основного колебательного состояния  $\text{UF}_6$  составляет не более 75 %, в то время как остальные молекулы распределены между низколежащими колебательными уровнями. И лишь при температуре  $T \leq 50$  К населенность основного колебательного состояния составляет не менее 92 % [2, 54]. Частоты переходов молекул с низколежащих колебательных уровней незначительно смещены из-за межмодового ангармонизма в красную область относительно полосы поглощения молекул из основного колебательного состояния [57]. Поэтому для  $\text{UF}_6$  при сравнительно высоких температурах наряду с резонансным возбуждением молекул из основного состояния возможно на тех же лазерных частотах возбуждение молекул из заселенных низколежащих колебательных состояний, что

может привести к заметному уменьшению изотопической селективности процесса возбуждения верхних уровней.

При применении методов МЛРИ урана обычно проводится изотопно-селективная диссоциация или возбуждение (в случае низкоэнергетических методов) молекул  $^{235}\text{UF}_6$ . Мы рассмотрели схемы и параметры изотопно-селективного двухфотонного возбуждения колебательных состояний  $2\nu_3$  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 молекул  $\text{UF}_6$ .

Реализация в предложенных схемах резонансного многофотонного заселения состояний  $4\nu_3$  молекул  $\text{UF}_6$  теми же лазерными импульсами, которые используются для изотопно-селективного возбуждения состояний  $2\nu_3$   $\text{UF}_6$ , способствует увеличению эффективности и селективности процесса возбуждения молекул. Это было экспериментально продемонстрировано в работе [56] на примере исследования резонансных переходов при многофотонном возбуждении молекул  $\text{SF}_6$ .

**Таблица 2.** Параметры возможных схем резонансного двухфотонного бихроматического возбуждения колебательных состояний  $2\nu_3$  молекул  $^{238}\text{UF}_6$  и  $^{235}\text{UF}_6$  ИК-излучением двух пары- $\text{H}_2$ -лазеров. При стимулированном комбинированном рассеянии на вращательных уровнях параводорода частота генерации  $\text{CO}_2$ -лазера уменьшается на  $354.33 \text{ см}^{-1}$  [33]

Молекула	Возбуждаемое состояние и его частота, $\text{см}^{-1}$	Частота пары- $\text{H}_2$ -лазера-1 $\nu_{L1}$ , $\text{см}^{-1}$	Линия и частота, $\text{см}^{-1}$ $\text{CO}_2$ -лазера-1 накачки	Частота пары- $\text{H}_2$ -лазера-2 $\nu_{L2}$ , $\text{см}^{-1}$	Линия и частота, $\text{см}^{-1}$ $\text{CO}_2$ -лазера-2 накачки	Частотная отстройка в конечном состоянии, $\Delta\nu_{fin} = 2\nu_3 - (\nu_{L1} + \nu_{L2})$ , $\text{см}^{-1}$
$^{238}\text{UF}_6$	$2\nu_3 E$ (1252.84)	621.63	10R(20), 975.93	631.19	10R(36), 985.49	+0.02
	$2\nu_3 A1$ (1253.09)	622.91	10R(22), 977.21	630.08	10R(34), 984.38	+0.10
	$2\nu_3 F2$ (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
	$2\nu_3 E$ (1254.05)	622.91	10R(22), 977.21	631.19	10R(36), 985.49	-0.05
	$2\nu_3 A1$ (1254.30)	618.96	10R(16), 973.29	635.35	10R(44), 989.65	-0.01
	$2\nu_3 A1$ (1254.30)	624.17	10R(24), 978.47	630.08	10R(34), 984.38	+0.05
	$2\nu_3 F2$ (1256.87)	621.63	10R(20), 975.93	635.35	10R(44), 989.65	-0.11

## 5. ЗАКЛЮЧЕНИЕ

На основе спектроскопических данных об обертонных состояниях колебания  $\nu_3$  молекул  $\text{UF}_6$  и о частотах излучения  $\text{CF}_4$ - и пары- $\text{H}_2$ -лазеров, излучающих в области 16 мкм, выполнен анализ возможности резонансного двухфотонного изотопно-селективного возбуждения состояний  $2\nu_3$  молекул  $\text{UF}_6$  указанными лазерами.

Предложены схемы и приведены параметры резонансного бихроматического возбуждения состояний  $2\nu_3$  молекул  $^{238}\text{UF}_6$  и  $^{235}\text{UF}_6$ , охлажденных до температуры  $T \leq 50\text{--}70$  К в газодинамическом потоке, ИК-излучением двух  $\text{CF}_4$ -лазеров, а также двух пары- $\text{H}_2$ -лазеров. Селективное возбуждение обертонных колебательных состояний  $2\nu_3$  молекул  $^{238}\text{UF}_6$  и  $^{235}\text{UF}_6$  предложенным способом можно по-

ложить в основу процесса МЛРИ урана с использованием низкоэнергетических методов.

Предложенные в данной работе схемы резонансного изотопно-селективного двухфотонного бихроматического возбуждения колебательных состояний  $2\nu_3$  молекул  $\text{UF}_6$  следует, по нашему мнению, иметь в виду при разработке технологий МЛРИ урана наряду с другими схемами и методами изотопно-селективного лазерного ИК-возбуждения и диссоциации молекул  $\text{UF}_6$ .

В случае применения для разделения изотопов урана метода многофотонной ИК-диссоциации молекул резонансное возбуждение колебательных состояний  $3\nu_3$   $\text{UF}_6$  излучением двух лазеров и последующая их диссоциация теми же лазерными импульсами являются [49] более предпочтительными по сравнению с резонансным возбуждением состоя-

ний  $2\nu_3$   $\text{UF}_6$ . 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  $\text{UF}_6$  бихроматическим излучением двух ИК-лазеров.

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

## ЛИТЕРАТУРА

1. Г. Н. Макаров, УФН **185**, 717 (2015).
2. Г. Н. Макаров, УФН (2021); DOI: 10.3367/UFNr. 2021.02.038942.
3. В. Ю. Баранов, Е. И. Козлова, Ю. А. Колесников, А. А. Котов, в сб. *Изотопы: свойства, получение, применение*, т. 1, под ред. В. Ю. Баранова, Физматлит, Москва (2005), с. 474.
4. W. D. Metz, Science **185**, 602 (1974).
5. A. J. Glass, UCRL-50021-75, 1-55 (1975).
6. N. Camarcat, A. Lafon, J.-P. Perves et al., Proc. SPIE 1859, Laser Isotope Separation (28 May 1993); doi: 10.1117/12.145494; <https://doi.org/10.1117/12.145494>.
7. W. Fuss, Report MPQ 346, February 2015 (Max-Planck-Institute fur Quantenoptik).
8. Атомная энергия 2.0; <https://www.atomic-energy.ru/keywords/vou-nou>.
9. World Nuclear News, 11 December 2013; <https://www.world-nuclear-news.org/ENF-Megatons-to-Megawatts-program-concludes-1112134.html>.
10. J. Kim, J. W. Eerkens, and W. H. Miller, Nucl. Sci. Eng. **156**, 219 (2007).
11. J. W. Eerkens and J. Kim, AIChE J. **56**(9), 2331 (2010).
12. P. Mathi, V. Parthasarathy, A. K. Nayak et al., Proc. Nat. Acad. Sci. India, Sect. A, Phys. Sci. (2015), pp. 1-16; DOI: 10.1007/s40010-015-0249-6.
13. E. Ronander, H. J. Strydom, and R. L. Botha, Pramana–J. Phys. **82**(1), 49 (2014).
14. C. D. Ferguson and J. Boureston, <https://www.iranwatch.org/sites/default/files/perspex-fwi-Laser.pdf>.
15. Y. Li, Y. Zhang, Y. Kuang et al., Opt. Comm. **283**, 2575 (2010).
16. В. М. Апатин, В. Н. Лохман, Г. Н. Макаров и др., ЖЭТФ **152**, 627 (2017).
17. В. М. Апатин, В. Н. Лохман, Г. Н. Макаров и др., КЭ **48**, 157 (2018).
18. В. М. Апатин, Г. Н. Макаров, Н.-Д. Д. Огурок и др., ЖЭТФ **154**, 287 (2018).
19. V. N. Lokhman, G. N. Makarov, A. L. Malinovskii, A. N. Petin, D. G. Poydashev, and E. A. Ryabov, Laser Phys. **28**, 105703 (2018).
20. А. Н. Петин, Г. Н. Макаров, КЭ **49**, 593 (2019).
21. В. Н. Лохман, Г. Н. Макаров, А. Н. Петин и др., ЖЭТФ **155**, 216 (2019).
22. Г. Н. Макаров, УФН **190**, 264 (2020).
23. Г. Н. Макаров, А. Н. Петин, ЖЭТФ **119**, 5 (2001).
24. G. N. Makarov and A. N. Petin, Chem. Phys. **266**, 125 (2001).
25. Г. Н. Макаров, А. Н. Петин, Письма в ЖЭТФ **111**, 361 (2020).
26. Г. Н. Макаров, А. Н. Петин, ЖЭТФ **159**, 281 (2021).
27. <http://www.silex.com.au>.
28. SILEX Process. [www.chemeurope.com/en/encyclopedia/Silex\\_Process.html](http://www.chemeurope.com/en/encyclopedia/Silex_Process.html).
29. SILEX Uranium Enrichment, SILEX Annual Report 2020, <http://www.silex.com.au>.
30. J. L. Lyman, Report LA-UR-05-3786, Los Alamos National Laboratory (2005).
31. J. J. Tiee and C. Wittig, Appl. Phys. Lett. **30**, 420 (1977).
32. J. J. Tiee, T. A. Fischer, and C. Wittig, Rev. Sci. Instr. **50**, 958 (1979).
33. R. L. Byer, IEEE J. Quant. Electr. **12**, 732 (1976).
34. R. S. McDowell, C. W. Patterson, C. R. Jones et al., Opt. Lett. **4**, 274 (1979).
35. C. W. Patterson, R. S. McDowell, and N. G. Nereson, IEEE J. Quant. Electr. **16**, 1164 (1980).
36. С. С. Алимпиев, Г. С. Баронов, Н. В. Карлов и др., КЭ **6**, 553 (1979).
37. А. З. Грасюк, В. С. Летохов, В. В. Лобко, КЭ **7**, 2261 (1980).

- 38.** J. P. Aldridge, E. G. Brock, H. Filip et al., *J. Chem. Phys.* **83**, 34 (1985).
- 39.** M. Takami, T. Oyama, T. Watanabe et al., *Jpn. J. Appl. Phys.* **23**, L88 (1984).
- 40.** С. С. Алимпиев, Н. В. Карлов, Ш. Ш. Набиев и др., КЭ **8**, 623 (1981).
- 41.** K. Takeuchi, H. Tashiro, S. Kato et al. *J. Nucl. Sci. Technol.* **26**, 301 (1989).
- 42.** Y. Okada, S. Kato, K. Sunouchi et al., *Appl. Phys. B* **62**, 77 (1996).
- 43.** G. A. Laguna, K. C. Kim, C. W. Patterson et al., *Chem. Phys. Lett.* **75**, 357 (1980).
- 44.** B. J. Krohn, R. S. McDowell, C. W. Patterson et al., *J. Mol. Spectr.* **132**, 285 (1988).
- 45.** J. W. Eerkens, R. P. Griot, J. H. Hardin, and R. G. Smith, in *Conference on Lasers and Electro-Optics, OSA Technical Digest*, Optical Society of America (1986); <https://www.osapublishing.org/abstract.cfm?URI=CLEO-1986-TUI4>.
- 46.** Xu Bao-yu, Liu Yong, Dong Wen-bo et al., INIS (International Nuclear Information System) **21** (20), 1990; [https://inis.iaea.org/search/search.aspx?orig\\_q=RN:21077879](https://inis.iaea.org/search/search.aspx?orig_q=RN:21077879).
- 47.** O. V. Budilova, A. A. Ionin, I. O. Kinyaevskiy et al., *Opt. Comm.* **345**, 163 (2015).
- 48.** I. Y. Baranov and A. V. Koplev, *Proc. SPIE* **7915**, 7915F (2011); DOI: 10.1117/12871578.
- 49.** Г. Н. Макаров, КЭ **51**, 643 (2021).
- 50.** В. С. Летохов, В. П. Чеботаев, *Принципы нелинейной лазерной спектроскопии*, Наука, Москва (1975), с. 107.
- 51.** С. С. Алимпиев, С. М. Никифоров, Б. Г. Сартаков и др., КЭ **12**, 434 (1985).
- 52.** V. M. Apatin, V. N. Lokhman, and G. N. Makarov, *Laser Chem.* **5**, 231 (1985).
- 53.** C. W. Patterson, B. J. Krohn, and A. S. Pine, *Opt. Lett.* **6**, 39 (1981).
- 54.** R. J. Jensen, O. P. Judd, and J. A. Sullivan, *Los Alamos Sci. No. 4*, 2 (1982).
- 55.** R. J. Jensen, J. A. Sullivan, and F. T. Finch, *Separat. Sci. Technol.* **15**, 509 (1980).
- 56.** В. М. Апатин, В. Н. Лохман, Г. Н. Макаров, *Опт. и спектр.* **63**, 762 (1987).
- 57.** V. N. Bagratashvili, V. S. Letokhov, A. A. Makarov, and E. A. Ryabov, *Multiple Photon Infrared Laser Photophysics and Photochemistry*, Harwood Acad. Publ., Chur (1985).