

02;07;10;12

Анализ результатов и оптимизация параметров потока питания при разделении изотопов неодима методом селективной лазерной фотоионизации атомного пара

© С.К. Ковалевич, В.П. Лабозин, Г.О. Цветков

Российский научный центр „Курчатовский институт“,
123182 Москва, Россия
e-mail: secretariat@imp.kiae.ru

(Поступило в Редакцию 8 апреля 2004 г.)

Проводился анализ экспериментальных результатов по разделению изотопов неодима методом селективной лазерной фотоионизации атомного пара. Показано, что в исследованной экспериментальной ячейке основными деселектирующими процессами являются рассеяние атомов в рабочем объеме и смещение контура поглощения атомов из-за дефекта Доплера. Предложена методика обработки результатов экспериментов, позволяющая определить степень влияния каждого деселектирующего процесса на обогащение и производительность продукта. Получена экспериментальная зависимость концентрации целевого изотопа в фотоионах в камере сепаратора от угла расходимости (коллимации) потока атомного пара в направлении вдоль лазерного луча. Предложена методика для определения оптимальной коллимации потока пара.

Введение

Данная работа посвящена анализу результатов экспериментов [1–5] по разделению изотопов неодима методом селективной лазерной фотоионизации атомного пара. AVLIS (Atomic Vapor Laser Isotope Separation). Метод состоит в том, что поток испаренных атомов проходит через облучаемый лазерами объем, в котором происходит селективная фотоионизация целевого изотопа. Образованные таким образом ионы экстрагируются из потока пара на коллектор при помощи электрического поля. Остальные атомы потока (оставшаяся нейтральными) попадают на сборник отвала. Эксперименты по разделению изотопов неодима проводились с целью определения перспективы метода в отношении производства продукта, обогащенного изотопом ^{150}Nd до 70%. Такой продукт в количестве нескольких десятков килограмм необходим для фундаментальных исследований двойного β -распада [6,7]. Природная концентрация ^{150}Nd 5.6%. Поскольку неодим не имеет летучих соединений, его изотопы не могут быть разделены хорошо развитым центробежным способом.

Описание экспериментальной установки и методики

На рис. 1 представлена схема установки для исследований и пробных наработок. Испарение неодима происходит из тигля длиной 30 см, нагреваемого до температуры 1700–1900 К [1]. Конструкция испарителя допускает установку коллиматора для ограничения угла расходимости потока пара в направлении распространения лазерного луча. В различных экспериментах использовались потоки пара с половинным углом коллимации от 15 до 60°.

Лазерная система состоит из комплекса лазеров на парах меди и комплекса перестраиваемых по длине волны лазеров на красителях. Комплекс лазеров на парах меди вырабатывает импульсное излучение, состоящее из желтой и зеленой компонент общей мощностью 300 W. Длительность импульса излучения 30 ns, частота повторения импульсов 10 kHz [8]. Излучение лазеров на парах меди используется для накачки трех линеек лазеров на красителях в соответствии с числом ступеней фотоионизации. Излучение лазеров на красителях с максимальной суммарной мощностью 100 W направляется в камеру сепаратора [2]. Многопроходная оптическая система,

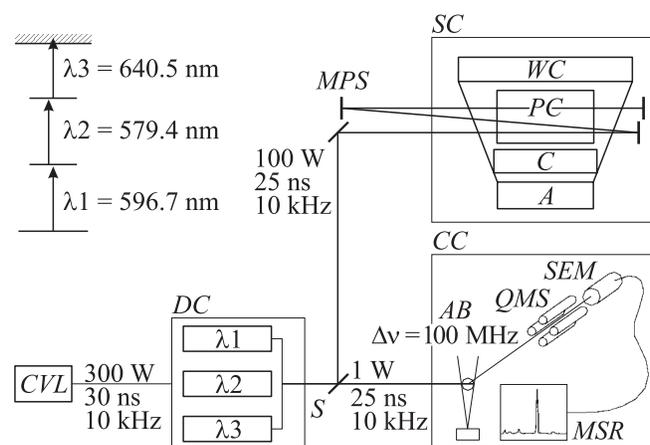


Рис. 1. Схема установки для исследований и пробных наработок изотопов неодима: CVL — комплекс лазеров на парах меди, DC — комплекс лазеров на красителях, S — расщепитель, MPS — многопроходная система, SC — камера сепаратора, A — испаритель, C — коллектор продукта, WC — сборник отвала, CC — контрольная камера, AB — атомный пучок, QMS — квадрупольный масс-спектрометр, SEM — вторичный электронный умножитель, MSR — регистрация масс-спектров.

Таблица 1.

Изотопный состав, %	I/D	$C = 150$	$C = 148$	$C = 146$	$D = 145$	$C = 144$	$C = 143$	$C = 142$
Природный		5.6	5.7	17.2	8.3	23.8	12.2	27.2
Измеренный в масс-спектрометре		91.6	4.59	2.6	0.03	0.9	0.03	0.06
Измеренный на коллекторе		34.3	11.2	12.9	5.4	14.2	7.0	15.3
Смешивание состава	1	48.6	5.1	9.9	4.2	12.3	6.1	13.6
	0.8	43.8	5.2	10.7	4.6	13.6	6.8	15.1
в масс-спектрометре с природным	0.7	41.0	5.2	11.2	4.9	14.4	7.2	16.0
	0.6	37.9	5.3	11.7	5.2	15.2	7.6	17.0
в соотношении I/D	0.5	34.3	5.2	12.3	5.5	16.2	8.1	18.2

установленная в камере, позволяет осуществлять 20 проходов лазерного луча над испарителем неодима, что увеличивает объем облучаемого пара. Схема фотоионизации, использовавшаяся в экспериментах, представлена на рис. 1. Непосредственно над рабочим объемом устанавливается сборник отвала.

Небольшая часть излучения ($\sim 1\%$) ответвляется в контрольную камеру, где взаимодействует с тонким пучком атомов неодима (доплеровская ширина линии $\Delta\nu_D \approx 100$ МГц). Взаимодействие происходит непосредственно в источнике ионов квадрупольного масс-спектрометра. Доля ответвляемой мощности и размер объема взаимодействия подобраны так, чтобы обеспечить равенство интенсивностей лазерного излучения в камере сепаратора и в контрольной масс-спектрометрической установке. В течение всего эксперимента производится регистрация состава фотоионов со скоростью порядка одного масс-спектра в минуту.

Длительность экспериментов по наработке, как правило, составляла 1 h. По окончании эксперимента производился смыв продукта, полученного на коллекторе фотоионов, а также неодима, попавшего на сборник отвала. Изотопный состав и количество неодима в полученных образцах определялся в независимой аналитической лаборатории. Таким образом определялись внешние параметры процесса: поток продукта P , концентрация целевого изотопа в продукте C_P , поток отвала W , концентрация целевого изотопа в отвале C_W . Поток питания F определялся по формуле

$$F = P + W. \quad (1)$$

Деселектирующие процессы

При наработке весовых количеств AVLIS-методом с увеличением производительности растет влияние деселектирующих процессов, таких как рассеяние атомов в рабочем объеме и резонансная перезарядка. При работе с потоками пара неодима, имеющими значительную расходимость, следует принимать во внимание, что доплеровское уширение спектральной линии становится сравнимым с изотопическим сдвигом. В результате

действия деселектирующих процессов концентрация целевого изотопа в продукте оказывается ниже концентрации, измеренной в контрольной масс-спектрометрической установке.

В табл. 1 представлены результаты эксперимента с многомодовыми лазерами с шириной линии генерации ~ 1 GHz [9]. В первой строке представлены природные концентрации изотопов неодима, во второй — усредненный за время наработки масс-спектр, полученный в контрольной масс-спектрометрической установке. В третьей строке представлен изотопный состав в образце, смытом с коллектора фотоионов. Видно, что концентрация целевого изотопа ^{150}Nd значительно упала по сравнению с концентрацией в масс-спектрометре. Это могло произойти за счет прихода на коллектор нейтрального потока атомов с природным составом.

Попробуем получить состав продукта на коллекторе путем добавления природного состава к составу, измеренному в контрольном масс-спектрометре, полагая, что изотопная концентрация фотоионов в сепараторе равна концентрации фотоионов в масс-спектрометре. Концентрация i -ого изотопа на коллекторе равна

$$C_{Pi} = \frac{I \cdot C_{photoi} + DC_{Fi}}{I + D} = \frac{(I/D)C_{MSi} + C_{Fi}}{(I/D) + 1}, \quad (2)$$

где C_{photoi} — концентрация i -го изотопа в фотоионах в камере сепаратора, C_{MSi} — концентрация i -го изотопа в контрольном масс-спектрометре, I/D — отношение между селективным потоком (I) фотоионов и потоком (D) нейтральных атомов с природной концентрацией.

Результаты такого добавления представлены в нижних строках таблицы. Из них можно сделать вывод о том, что изотопный состав, получаемый на коллекторе, не может быть получен добавлением природного состава к составу, измеренному в масс-спектрометре. Следовательно, исходный изотопный состав фотоионов в камере сепаратора отличается от состава в масс-спектрометре. Получению состава на коллекторе путем смешивания природного и масс-спектрометрического состава препятствует высокая концентрация изотопа Nd-148 на

Таблица 2.

Изотопный состав, %	I/D	$C = 150$	$C = 148$	$C = 146$	$D = 145$	$C = 144$	$C = 143$	$C = 142$
Природный		5.6	5.7	17.2	8.3	23.8	12.2	27.2
Измеренный в масс-спектрометре		75.45	15.01	4.9	1.17	2.1	0.49	0.9
Измеренный на коллекторе		23.8	7.3	13.7	6.5	18.4	9.4	20.9
Смешивание состава в масс-спектрометре с природным в соотношении I/D	0.353	23.8	8.1	14.0	6.4	18.1	9.1	20.3

коллекторе. Этот изотоп является соседним в спектре поглощения по отношению к целевому Nd-150. Поэтому можно предположить, что искажение состава фотоионов в камере сепаратора происходит из-за эффекта Доплера. Действительно, в масс-спектрометре лазерный луч взаимодействует с атомным пучком, имеющим расходимость 4° , что соответствует доплеровской ширине контура поглощения на половине высоты ~ 100 MHz. В камере же сепаратора поток имел угол раскрытия вдоль лазерного луча полный $\sim 120^\circ$, что соответствует доплеровской ширине ~ 1 GHz. Таким образом, в рассмотренном эксперименте доплеровская ширина потока пара в камере сепаратора оказывается приблизительно равной спектральной ширине лазеров и изотопическому сдвигу между изотопом ^{150}Nd и ^{148}Nd на первом переходе.

Для проверки вышеуказанного предположения в поток атомов в сепараторе был установлен коллиматор, ограничивающий угол пролета атомов полным углом 30° . В табл. 2 представлены результаты этого эксперимента, из которых следует, что состав на коллекторе может быть получен путем смешивания двух составов. Это говорит о том, что изотопные составы фотоионов в камере сепаратора и в масс-спектрометре в данном эксперименте примерно одинаковы. Поскольку рассматриваемые эксперименты с различными углами коллимации атомного потока проведены при сравнимых атомных плотностях, в одинаковых экспериментальных условиях, можно сделать вывод, что уменьшение концентрации целевого изотопа в фотоионах по сравнению с измеренной в масс-спектрометрической установке связано с перекрытием контуров поглощения различных изотопов вследствие эффекта Доплера.

Методика обработки экспериментальных результатов

Для определения степени влияния различных деселектирующих процессов оказывается очень важным определить отношение I/D обогащенной составляющей I к составляющей с природной концентрацией D , что в свою очередь позволяет определить изотопный состав фотоионов в камере сепаратора, коэффициент извлечения целевого изотопа за счет фотоионизации и коэффициент рассеяния атомов в рабочем объеме. К сожалению, отно-

шение I/D не может быть определено путем использования только внешних параметров разделительной ячейки. Однако это важное отношение может быть определено сравнением концентраций четных изотопов, полученных в продукте и измеренных в масс-спектрометре.

Основа применяемой нами методики определения I/D состоит в следующем. Концентрация i -го изотопа в масс-спектрометрической камере определяется отношением

$$C_{\text{MSi}} = \frac{C_{\text{Fi}}\eta_{\text{MSi}}}{\sum_i C_{\text{Fi}}\eta_{\text{MSi}}}, \quad (3)$$

где η_{MSi} — эффективность фотоионизации i -го изотопа в масс-спектрометрической установке.

Аналогично концентрация i -го изотопа в фотоионах в камере сепаратора определяется отношением

$$C_{\text{photoi}} = \frac{C_{\text{Fi}}\eta_i}{\sum_i C_{\text{Fi}}\eta_i}, \quad (4)$$

где η_i — эффективность фотоионизации i -го изотопа в камере сепаратора.

Отношение $\alpha_i = C_{\text{photoi}}/C_{\text{MSi}}$ концентрации i -го изотопа на этапе фотоионизации в камере сепаратора C_{photoi} к концентрации этого же изотопа, измеренной в масс-спектрометре C_{MSi} , численно равно отношению соответствующих эффективностей фотоионизации этого изотопа, умноженному на одинаковую для всех изотопов величину,

$$\alpha_i = \frac{C_{\text{photoi}}}{C_{\text{MSi}}} = \frac{\eta_i}{\eta_{\text{MSi}}} \frac{\sum_i C_{\text{Fi}}\eta_{\text{MSi}}}{\sum_i C_{\text{Fi}}\eta_i}. \quad (5)$$

Искажение изотопного состава фотоионов в камере сепаратора по сравнению с измеренным в масс-спектрометре определяется эффектом Доплера, т.е. спектрально зависимым деселектирующим процессом. Другими словами, чем меньше изотопический сдвиг данного изотопа $\Delta\nu_{150-i}$ от целевого изотопа, на который настроены длины волн лазеров, тем большее изменение претерпит эффективность фотоионизации. Поскольку для использованных переходов неодима выполняется неравенство

$$\Delta\nu_{150-148} < \Delta\nu_{150-146} < \Delta\nu_{150-144} < \Delta\nu_{150-142}, \quad (6)$$

Таблица 3.

		150	148	146	145	144	143	142
Природный состав, %		5.6	5.7	17.2	8.3	23.8	12.2	27.2
Состав, измеренный в масс-спектрометре, %		91.58	4.59	2.61	0.27	0.86	0.03	0.08
Изотопный состав в образце 75, %	Измеренный C_p	34.1 ± 0.2	11.1 ± 0.2	12.9 ± 0.2	5.4 ± 0.2	14.2 ± 0.2	7.0 ± 0.2	15.3 ± 0.2
	Расчетный состав фотоионов	70 ± 2	18 ± 1	7.4 ± 0.2	1.7 ± 0.2	2.4 ± 0.5	0.4 ± 0.3	0.1 ± 0.1
	$C_{photo}, I/D = 0.78 \pm 0.03$							
Изотопный состав в образце 76, %	Измеренный C_p	56.3 ± 0.2	16.3 ± 0.2	9.3 ± 0.2	3.0 ± 0.2	6.4 ± 0.2	2.9 ± 0.2	5.8 ± 0.2
	Расчетный состав фотоионов	71 ± 2	19 ± 1	7.1 ± 0.2	1.5 ± 0.2	1.3 ± 0.5	0.3 ± 0.1	0.1 ± 0.1
	$C_{photo}, I/D = 3.7 \pm 0.2$							
Изотопный состав в образце 77, %	Измеренный C_p	35.3 ± 0.2	10.9 ± 0.2	12.5 ± 0.2	5.2 ± 0.2	13.9 ± 0.2	7.0 ± 0.2	15.2 ± 0.2
	Расчетный состав фотоионов	73 ± 2	18 ± 1	7.0 ± 0.2	1.3 ± 0.2	1.4 ± 0.5	0.4 ± 0.3	0.1 ± 0.1
	$C_{photo}, I/D = 0.79 \pm 0.03$							
Изотопный состав в образце 78, %	Измеренный C_p	16.5 ± 0.2	7.7 ± 0.2	15.4 ± 0.2	7.2 ± 0.2	20.1 ± 0.2	10.3 ± 0.2	22.8 ± 0.2
	Расчетный состав фотоионов	73 ± 4	18 ± 1	6.0 ± 0.5	1.5 ± 0.3	1.0 ± 1	0.5 ± 0.5	0.1 ± 0.1
	$C_{photo}, I/D = 0.19 \pm 0.01$							
Изотопный состав в образце 79, %	Измеренный C_p	9.6 ± 0.2	6.4 ± 0.2	16.6 ± 0.2	7.9 ± 0.2	22.5 ± 0.2	11.5 ± 0.2	25.6 ± 0.2
	Расчетный состав фотоионов	71 ± 9	17 ± 2	7.3 ± 2	1.7 ± 1	2 ± 2	1 ± 1	0.1 ± 0.1
	$C_{photo}, I/D = 0.065 \pm 0.005$							
Усредненный по всем образцам расчетный состав фотоионов, %		71.8	18.0	6.8	1.5	1.4	0.4	0.1

то должно выполняться неравенство

$$\alpha_{148} > \alpha_{146} > \alpha_{144} > \alpha_{142} \quad (7)$$

или

$$0 < \frac{\alpha_i}{\alpha_{i+1}} = \frac{C_{photoi} C_{MSi+1}}{C_{photoi+1} C_{MSi}} < 1. \quad (8)$$

Используя уравнение (2), концентрация C_{photoi} может быть выражена через концентрацию i -го изотопа в продукте C_{Pi} и одинаковое для всех изотопов отношение I/D обогащенной составляющей I к составляющей s природной концентрацией D по формуле

$$C_{photoi} = \frac{(I/D + 1)C_{Pi} - C_{Fi}}{(I/D)}, \quad (9)$$

где C_{Fi} — природная концентрация i -го изотопа.

Отношение I/D в свою очередь можно определить, используя следующую методику, при этом наибольшая точность определения I/D получается при использовании концентраций изотопов Nd-144 и Nd-142. Подставляя (9) в (8), получаем неравенство для I/D

$$\frac{C_{F142}}{C_{P142}} - 1 \leq I/D \leq \frac{C_{MS144}C_{F142} - C_{MS142}C_{F144}}{C_{MS144}C_{P142} - C_{MS142}C_{P144}} - 1. \quad (10)$$

Неравенство (10) выражает предположение, что, с одной стороны, эффективность фотоионизации изотопа Nd-142 не может быть меньше 0, а с другой стороны, эффективность фотоионизации изотопа Nd-142 в камере сепаратора не может измениться по сравнению с эффективностью фотоионизации Nd-142 в масс-спектрометре в большей степени, чем для изотопа

Nd-144. В подавляющем числе экспериментов неравенство (10) определяет значение I/D с точностью до нескольких процентов. Определение I/D позволяет вычислять остальные внутренние параметры разделительной ячейки: усредненную по всему эксперименту концентрацию целевого изотопа на этапе фотоионизации в камере сепаратора C_{photo} (по формуле (9)), величину обогащенной составляющей I , величину составляющей s природной концентрацией D , а также коэффициент извлечения целевого изотопа за счет фотоионизации (долю целевого изотопа, собранную на коллекторе за счет селективной фотоионизации) K_{extr}

$$I = \frac{P \cdot I/D}{1 + I/D}, \quad D = \frac{P}{1 + I/D}, \quad K_{extr} = \frac{I \cdot C_{photo}}{FC_F}. \quad (11)-(13)$$

Пример применения описанного подхода к реальным экспериментальным данным представлен в табл. 3, где приведены природный изотопный состав неодима, изотопный состав, измеряемый в контрольной масс-спектрометрической установке, усредненный по времени эксперимента, изотопный состав образца, а также расчетные составы фотоионов в камере сепаратора для каждого образца. Образцы 75–79 получены в одном эксперименте из различных мест коллектора. Из приведенных данных видно, что расчетные изотопные составы фотоионов для всех образцов практически совпадают, что свидетельствует о правильности применяемой методики. В последней строчке таблицы приведен усредненный по образцам расчетный изотопный состав фотоионов. Следует отметить, что в данном примере основной вклад в ошибку определения концентраций изотопов вносит

погрешность измерения концентраций изотопов Nd-144 и Nd-142. В качестве контроля, используя полученное значение K_{extr} , рассчитывалась концентрация целевого изотопа в отвале, которая находилась в хорошем соответствии с измеренной на сборнике отвала.

Неравенство (7) подтверждается расчетами селективной фотоионизации, предложенными в работах [10,11]. В работах рассматривается решение уравнений для атомной матрицы плотности, описывающей поведение ансамбля атомов в сильных монохроматических полях с учетом влияния доплеровского уширения переходов. В работах предложены формулы для расчета вероятности фотоионизации нецелевых изотопов в зависимости от изотопического сдвига, интенсивности лазерного излучения и ширины доплеровского контура.

Непосредственное измерение изотопного состава фотоионов в камере сепаратора осложняется необходимостью обеспечения работоспособности масс-спектрометра в области интенсивного потока пара металла. В связи с этим предложенная методика является удобным инструментом определения внутренних характеристик рассматриваемой разделительной ячейки.

Анализ экспериментальных данных

Эксперименты показывают, что поток на коллектор составляющей с природным изотопным составом D зависит от потока питания и может быть представлен в виде

$$D = K_{SC}F. \quad (14)$$

В то же время, как показывают эксперименты, коэффициент пропорциональности K_{SC} зависит от потока питания. На рис. 2 представлены экспериментальные значения K_{SC} (значки), которые получены из результатов наработок по формуле (13) и методом непосредственного измерения количества неодима, попавшего на коллектор после сеанса испарения без фотоионизации. Для сравнения на рис. 2 представлена расчетная зависимость коэффициента рассеяния атомов неодима в рабочем

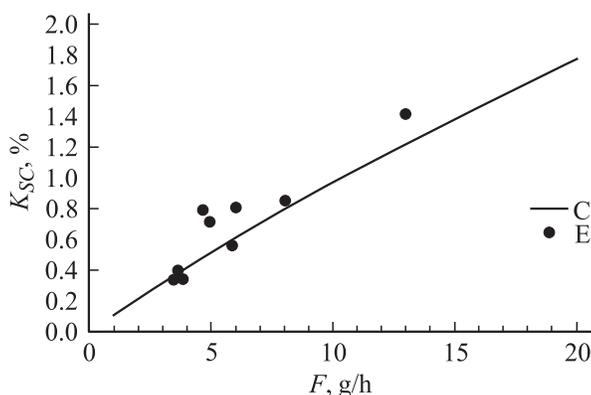


Рис. 2. Зависимость коэффициента рассеяния K_{SC} от потока питания F . E — эксперимент, C — расчет.

объеме от потока питания F . Расчет проводился следующим образом. Пространство рабочего объема разбивалось на элементы. Для каждого элемента определялась плотность атомов и соответствующая ей частота столкновений. Далее определялась вероятность попадания рассеянных атомов на коллектор. Учитывались только однократные столкновения. Сравнение экспериментов с расчетами показывает, что основным источником составляющей с природной концентрацией является рассеяние атомов в рабочем объеме. Расчет влияния резонансной перезарядки на концентрацию продукта с использованием сечения перезарядки из работы [12] показывает, что этот процесс незначителен по сравнению с рассеянием атомов. Таким образом, в исследованной конструкции разделительной ячейки основными деселектирующими процессами являются рассеяние атомов в рабочем объеме и эффект Доплера.

На рис. 2 видно, что коэффициент рассеяния K_{SC} практически линейно зависит от потока питания для геометрии, принятой в наших экспериментах. Этот результат может быть получен в рамках элементарной кинетической теории. Действительно, число столкновений, которое испытывает каждый атом в единицу времени, равно $n\sigma V$ (1/s), где n — плотность атомов в рабочем объеме (1/cm³), σ — сечение рассеяния атомов (cm²), V — средняя тепловая скорость движения атомов (cm/s). Учитывая, что число атомов в единице объема равно n , получим полное число столкновений в единице объема в единицу времени: $\nu = n^2\sigma V$ (1/cm³s). Тогда, считая, что на коллектор приходит доля рассеянных атомов k_g , определим поток рассеянных атомов на коллектор

$$D = k_g \nu S h m = k_g n^2 \sigma V S h m, \text{ g/h}, \quad (15)$$

где S — поперечное сечение потока пара (cm²); h — высота области, из которой приходят рассеянные атомы (cm); m — массовый коэффициент, который для неодима равен $9 \cdot 10^{-19}$ (g · s/h).

Поток рассеянных атомов на коллектор можно выразить через поток питания неодима F , входящего в разделительную ячейку $F = nVSm$ (g/h),

$$D = k_g n \sigma h F = K_{SC} F \quad (16)$$

$$K_{SC} = k_g n \sigma h, \quad (17)$$

где K_{SC} — коэффициент рассеяния атомов на коллекторе.

Из (17) видно, что коэффициент рассеяния зависит от плотности и можно записать

$$K_{SC} = \theta \cdot F, \quad \theta = k_g \sigma h / (V S \cdot 9 \cdot 10^{-19}), \text{ h/g}. \quad (18), (19)$$

Величина θ зависит только от свойств испаряемого вещества и геометрии экспериментальной ячейки. Элементарное рассмотрение рассеяния атомов дает линейную зависимость коэффициента рассеяния от потока питания, что подтверждается экспериментально для принятой в эксперименте геометрии и в исследованном

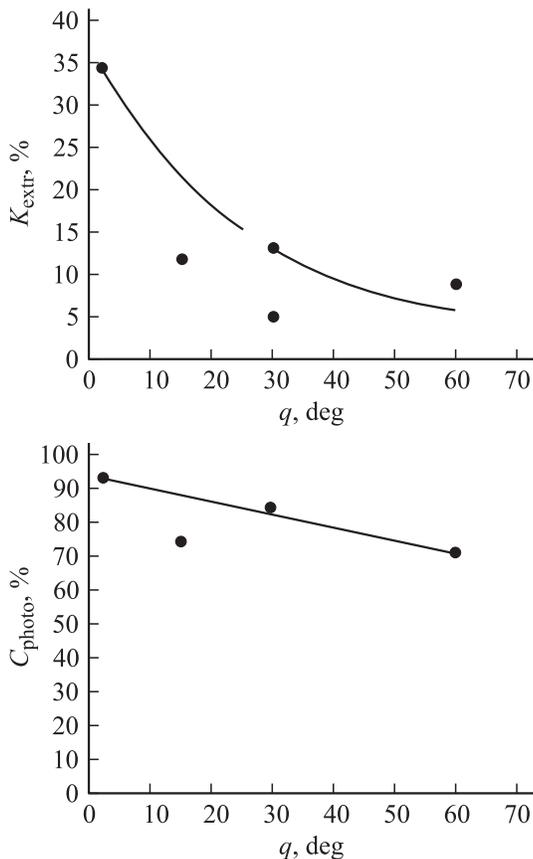


Рис. 3. Результаты экспериментов с потоками пара, имеющими различные углы расходимости вдоль лазерного луча. q — угол коллимации половинный. Зависимости построены по результатам экспериментов [5].

диапазоне атомной плотности. Измеренное значение θ для исследованной ячейки с длиной испарителя 30 см оказывается $\theta = 10^{-3}$ h/g, что при подстановке в формулу (19) числовых значений дает $k_g = 0.25$.

Рассмотрим влияние эффекта Доплера на селективность фотоионизации и эффективность фотоионизации целевого изотопа. На рис. 3 представлены результаты экспериментов с потоками пара, имеющими различные углы q расходимости вдоль лазерного луча, что достигалось установкой в поток коллимирующих решеток с различным шагом. Экспериментальные точки получены путем обработки результатов наработок по описанной выше методике с использованием формул (9), (13). В экспериментах использовались одномодовые лазеры на красителях. Применение одномодового лазера с шириной линии ~ 130 МГц позволяет существенно увеличить концентрацию целевого изотопа в фотоионах по сравнению с использованием многомодовых лазеров [3],[4]. Полученные результаты дают представление о степени уменьшения селективности фотоионизации и эффективности фотоионизации целевого изотопа, представленной на графике коэффициентом извлечения целевого изотопа, при увеличении угла раскрытия потока пара вдоль направления лазера, при конкретных

параметрах лазерного излучения, использовавшихся в экспериментах. Уменьшение эффективности ионизации с увеличением угла коллимации связано с увеличением числа атомов целевого изотопа в крыльях доплеровского контура, для которых вероятность фотоионизации существенно меньше, чем для атомов находящихся в центре контура.

Оптимизация параметров потока пара

Рассмотрим теперь, как полученные результаты могут быть использованы для оптимизации параметров потока пара. Концентрация целевого изотопа в продукте с учетом рассеяния атомов в рабочем объеме может быть представлена выражением [5]

$$C_P = \frac{K_{extr}C_F + K_{SC}C_F}{K_{extr} \cdot C_F/C_{photo} + K_{SC}}. \quad (20)$$

Производительность P_{C_P} при концентрации в продукте Nd-150, равной C_p , выражается как

$$P_{C_P} = (K_{extr}C_F/C_{photo} + K_{SC})F. \quad (21)$$

Зафиксируем концентрацию продукта и получим выражение для производительности ячейки с требуемой концентрацией целевого изотопа 0.7. Если концентрация продукта C_P оказывается выше требуемой 0.7, то ее можно довести до требуемой путем смешивания с природным составом. В итоге производительность по продукту с концентрацией Nd-150 $C_{150} = 0.7$

$$P_{0.7} = P_{C_P} \cdot (C_P - C_F)/(0.7 - C_F). \quad (22)$$

Подставляя в (22) C_P и P_{C_P} из (20) и (21), получаем

$$P_{0.7} = FK_{extr} \frac{C_F}{0.7 - C_F} \frac{C_{photo} - C_F}{C_{photo}}, \quad C_P \geq 0.7. \quad (23)$$

Значения потока питания F в (23) ограничены неравенством $C_P \geq 0.7$. Полагая $C_P = 0.7$ в формуле (20), выразим K_{SC}

$$K_{SC} \leq K_{extr} \frac{C_F}{C_{photo}} \left(\frac{C_{photo} - 0.7}{0.7 - C_F} \right). \quad (24)$$

Выражая коэффициент рассеяния K_{SC} через поток питания из (18), получаем ограничение на поток питания, соответствующее неравенству $C_P \geq 0.7$,

$$F_{0.7} \leq \frac{K_{SC}}{\theta} = \frac{1}{\theta} K_{extr} \frac{C_F}{0.7 - C_F} \left(\frac{C_{photo} - 0.7}{0.7 - C_F} \right). \quad (25)$$

Подставляя найденное значение $F_{0.7}$ в (23), получаем

$$P_{0.7} \leq \frac{1}{\theta} \left(\frac{C_F}{0.7 - C_F} \right)^2 \frac{C_{photo} - C_F}{C_{photo}} K_{extr}^2 \frac{C_{photo} - 0.7}{C_{photo}}. \quad (26)$$

Проведенный анализ показывает, что максимальная производительность исследованной экспериментальной ячейки по продукту с требуемой концентрацией, ограниченной рассеянием атомов в рабочем объеме, определяется выражением (26). Производительность при $C_p = 0.7$ зависит от коэффициента извлечения целевого изотопа за счет фотоионизации и обратно пропорциональна величине θ , характеризующей рассеяние атомов и совершенство геометрии ячейки разделения.

Второй физический фактор, влияющий на производительность исследованной разделительной ячейки по продукту с требуемой концентрацией, — смещение частоты линии поглощения атома вследствие эффекта

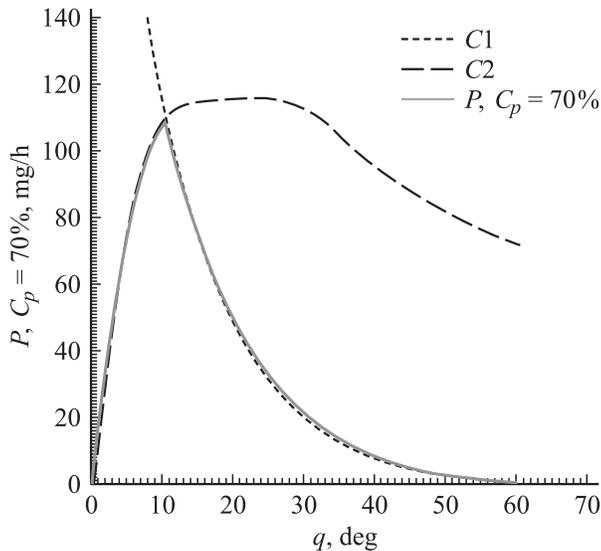


Рис. 4. Зависимость расчетной производительности P исследованной ячейки длиной 30 см при $C_p = 70\%$ от угла коллимации q потока пара. q — угол коллимации половинный; 1 — C_1 , 2 — C_2 .

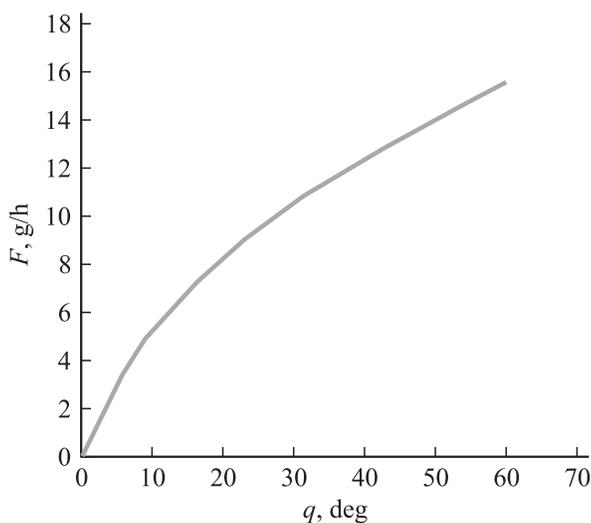


Рис. 5. Зависимость потока питания F от угла коллимации q для коллиматора длиной 30 см, шириной 2 см и высотой 2 см. q — угол коллимации половинный.

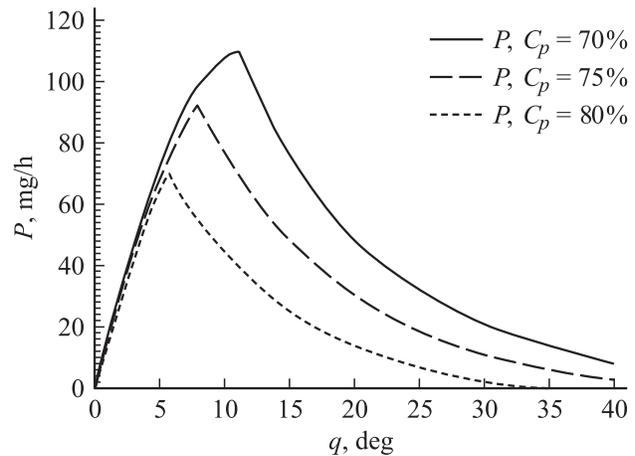


Рис. 6. Расчетная зависимость производительности P исследованной ячейки длиной 30 см от угла коллимации q потока пара при различных концентрациях изотопа Nd-150 в продукте. q — угол коллимации половинный.

Доплера. Можно показать, что существует оптимальная коллимация потока пара, обеспечивающая максимальную производительность продукта с требуемым обогащением. Например, если зависимости K_{extr} и C_{photo} от угла коллимации q ведут себя так, как показано на рис. 3 сплошными кривыми, то, подставляя эти функции $K_{\text{extr}}(q)$ и $C_{\text{photo}}(q)$ в выражение (26), получим зависимость производительности от коллимации потока вдоль лазерного излучения $P_{0.7}^{\text{dep}}(q)$ (рис. 4, кривая 1). Выражение (26) представляет баланс между потоком фотоионов и потоком рассеяния, необходимый для получения концентрации $C_{150} = 0.7$, поэтому дает ограничение производительности, накладываемое первым рассмотренным физическим явлением — рассеянием. С уменьшением угла коллимации наблюдается монотонный рост производительности, рассчитанный по формуле (26). Выражение (26) не учитывает того, что с уменьшением угла коллимации уменьшается поток питания F , который может без столкновений пройти через коллимирующую решетку. Для учета этого была рассчитана зависимость потока питания $F(q)$ от угла коллимации потока вдоль лазерного луча (рис. 5). Функция $F(q)$ показывает, какой максимальный поток атомов может пройти через данный коллиматор так, чтобы межатомные столкновения не оказывали значительного влияния на качество коллимации (доля не коллимированных атомов, образовавшихся в результате столкновений в коллиматоре и испарившихся с поверхностей коллиматора, не превышает 10%). Подставляя известные функции $F(q)$, $K_{\text{extr}}(q)$ и $C_{\text{photo}}(q)$ в формулу (23), получим ограничение, накладываемое на производительность применением коллиматора $P_{0.7}^{\text{col}}(q)$ (рис. 4, кривая 2). Производительность установки с заданными $F(q)$, $K_{\text{extr}}(q)$, $C_{\text{photo}}(q)$ и θ определяется минимальным значением

$$P_{0.7} = \min(P_{0.7}^{\text{col}}, P_{0.7}^{\text{dep}}). \quad (27)$$

Функция $P_{0.7}(q)$, определенная выражением (27), показана на рис. 4 сплошной линией. В экспериментальных наработках получена производительность 25 mg/h продукта с концентрацией ^{150}Nd -65% при длине испарителя вдоль лазерного луча 30 см и половинном угле коллимации потока 30° [5], что находится в хорошем согласии с расчетом (рис. 4). Из расчета следует, что зависимость производительности при $C_p = 70\%$ от угла коллимации имеет максимум при половинном угле коллимации ~ 10 градусов. На рис. 6 представлены расчетные зависимости производительности для различных требуемых концентраций целевого изотопа в продукте. С увеличением требуемой концентрации производительность уменьшается, а оптимальная коллимация смещается в область меньших углов расходимости.

Выводы

Таким образом, по результатам серии экспериментов с потоками пара с различной расходимостью вдоль лазерного луча при фиксированных параметрах лазерного излучения можно определить оптимальную коллимацию, обеспечивающую максимальную производительность продукта с требуемой концентрацией целевого изотопа для выбранных параметров лазерного излучения. Для этого при выполнении экспериментов с различной коллимацией нет необходимости получать продукт с требуемой концентрацией. Кроме того, потоки питания в этих экспериментах также могут отличаться. Существенные требования, предъявляемые к этим экспериментам, — сохранение параметров лазерного излучения (длин волн, спектральной ширины и интенсивностей), а также сохранение конфигурации зоны облучения атомов и многопроходной системы.

Используя вышеизложенную методику, по результатам измерений внешних параметров разделительной установки — потоков питания, продукта и отвала и их концентраций удалось определить такие внутренние параметры, как C_{photo} , K_{ext} и K_{SC} и тем самым выделить влияние лазерной фотоионизации, процесса рассеяния и влияние эффекта Доплера на производительность и селективность процесса. Таким образом, это позволяет целенаправленно совершенствовать установку и достаточно уверенно предсказывать ее разделительные характеристики.

Авторы выражают глубокую благодарность И.С. Григорьеву за плодотворные обсуждения и помощь при написании работы.

Список литературы

- [1] Григорьев А.И., Григорьев И.С., Ковалевич С.К. и др. // Сб. докл. 3-й Всесоюз. (международной) науч. конф. „Физико-химические процессы при селекции атомов и молекул“. 1998. С. 64.

- [2] Григорьев И.С., Дьячков А.Б., Лабозин В.П. и др. // Сб. докл. 4-й Всесоюз. (международной) науч. конф. „Физико-химические процессы при селекции атомов и молекул“. 1999. С. 93.
- [3] Grigoriev I.S., Diachkov A.B., Kuznetsov V.A. et al. // Proc. SPIE. 2003. Vol. 5121. P. 411–420.
- [4] Grigoriev I.S., Diachkov A.B., Kovalevich S.K. et al. // Proc. SPIE. 2003. Vol. 5121. P. 406–410.
- [5] Бабичев А.П., Григорьев И.С., Дьячков А.Б. и др. // Сб. докл. 8-й Всесоюз. (международной) науч. конф. „Физико-химические процессы при селекции атомов и молекул“. 2003.
- [6] Артемьев В.А., Брахман Э.В., Васильев С.И. и др. // Ядерная физика. 1996. Т. 59. № 1. С. 10–17.
- [7] Elliot S.R., Vogel P. // Ann. Rev. Nucl. Part. Sci. 2002. 52. P. 115–151.
- [8] Григорьев А.И., Доровский А.П., Кочетов В.А. и др. // Сб. докл. 4-й Всесоюз. (международной) науч. конф. „Физико-химические процессы при селекции атомов и молекул“. 1999. С. 91.
- [9] Григорьев И.С., Миронов С.М., Михайлов И.В. // Препринт РНЦ „Курчатовский институт“. 1995. № 5860/14.
- [10] Елецкий А.В., Зайцев Ю.Н., Фомичев С.В. // Препринт ИАЭ. 1988. № 4611/12.
- [11] Fomichev S.V. // J. Phys. D. 1992. Vol. 26. P. 349–358.
- [12] Думан Е.Л., Смирнов Б.М. // ТВТ. 1974. Т. 12. № 3. С. 502–508.