

Селективная фотоионизация изотопов лютеция

А.Б.Дьячков, С.К.Ковалевич, А.В.Лабозин, В.П.Лабозин, С.М.Миронов,
В.Я.Панченко, В.А.Фирсов, Г.О.Цветков, Г.Г.Шаталова

Рассмотрена оптическая схема трехступенчатой лазерной фотоионизации для обогащения изотопа ^{176}Lu из природного лютеция. Исследована сверхтонкая структура второго возбужденного состояния $5d6s7s\ ^4D_{3/2}$ с энергией $37194\ \text{см}^{-1}$ и автоионизационного состояния с энергией $53375\ \text{см}^{-1}$ изотопов ^{176}Lu и ^{175}Lu . Определены полный электронный момент автоионизационного уровня и константа A сверхтонкого магнитного взаимодействия. Из-за малой величины изотопического сдвига между ^{176}Lu и ^{175}Lu существенная селективность их разделения может быть достигнута на отдельных компонентах сверхтонкой структуры. Проведено первое пробное обогащение изотопа ^{176}Lu до концентрации 60%–70%.

Ключевые слова: лютеций, изотоп ^{177}Lu , лазерная фотоионизация, сверхтонкая структура, автоионизация, АВЛИС-технология.

1. Введение

В последнее время происходит активное внедрение лазерного метода разделения стабильных изотопов АВЛИС (атомный вариант лазерной изотопной сепарации). Впервые о коммерчески реализованном разделении изотопов АВЛИС-методом было сообщено в работе [1], посвященной разделению изотопов иттербия. В НИЦ «Курчатовский институт» разработана технология обогащения изотопа ^{150}Nd [2], который необходим в качестве источника при поиске двойного безнейтринного β -распада и массы нейтрино. В настоящее время идет проектирование промышленной установки, которая может произвести в течение трех лет требуемые 100 кг неодима с концентрацией ^{150}Nd около 60%. Схема такой установки представлена на рис. 1. Установка включает в себя комплекс лазеров на парах меди (ЛПМ), комплекс лазеров на красителях и комплекс сепаратора. Комплекс ЛПМ состоит из задающего генератора и усилителей, длительность лазерного импульса составляет 30 нс, частота повторения импульсов – 10 кГц. Общая средняя мощность лазерного излучения комплекса равна 1000 Вт. Это излучение используется для накачки перестраиваемых по длине волны лазеров на красителях. Комплекс лазеров на красителях имеет четыре генераторно-усилительные цепочки в соответствии с числом ступеней фотоионизации.

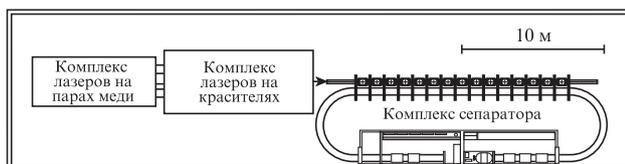


Рис. 1. Схема АВЛИС-установки.

А.Б.Дьячков, С.К.Ковалевич, А.В.Лабозин, В.П.Лабозин, С.М.Миронов, В.Я.Панченко, В.А.Фирсов, Г.О.Цветков, Г.Г.Шаталова. НИЦ «Курчатовский институт», Россия, 123182 Москва, пл. Акад. Курчатова, 1; e-mail: tsvetkov@imp.kiae.ru

Поступила в редакцию 28 июня 2012 г.

Генераторы производят стабилизированное по длине волны лазерное излучение со спектральной шириной 100 МГц в видимом диапазоне, которое, пройдя через усилители, направляется в камеру сепаратора. Общая средняя мощность комплекса лазеров на красителях равна 450 Вт. Комплекс сепаратора состоит из 30 разделительных ячеек, размещенных в 15 вакуумных модулях. Поток атомов, формируемый в испарителе разделительной ячейки, проходит через рабочий объем, заполненный лазерным излучением, где происходит селективная фотоионизация. Получающиеся ионы целевого изотопа вытягиваются из основного потока электрическим полем на коллектор продукта, в то время как атомы других изотопов, оставаясь нейтральными, попадают на коллектор отвала. Разделительная ячейка детально описана в работе [2]. Производительность установки составляет 100 г/сут. неодима с концентрацией 60% изотопа ^{150}Nd .

Однако обогащение неодима – не единственная задача, которую можно решать на проектируемой установке. В последнее время большим спросом на рынке пользуется изотоп ^{176}Lu с концентрацией 60%–70% [3]. Этот изотоп используется для производства радионуклида ^{177}Lu , который применяется в ядерной медицине. Лютеций не имеет летучих соединений, поэтому его изотопы не могут быть разделены хорошо развитым в России центробежным методом. Эффективность электромагнитного метода при выделении изотопа ^{176}Lu из природной смеси, содержащей 2.59% ^{176}Lu и 97.41% ^{175}Lu , также невелика из-за малой начальной его концентрации. Настоящая работа посвящается разработке АВЛИС-технологии получения обогащенного ^{176}Lu .

Оптический спектр лютеция не так богат, как у других редкоземельных элементов. Не так много линий поглощения можно использовать для первой ступени возбуждения в технологии разделения. В работах [4, 5] предлагается несколько схем двухступенчатой фотоионизации лютеция с достаточно большими сечениями, однако в них используются переходы в области длин волн 400–500 нм, в которой применение лазеров на красителях, накачиваемых ЛПМ, неэффективно. Поэтому для технологии АВЛИС целесообразно рассмотреть другую схему возбуждения, а

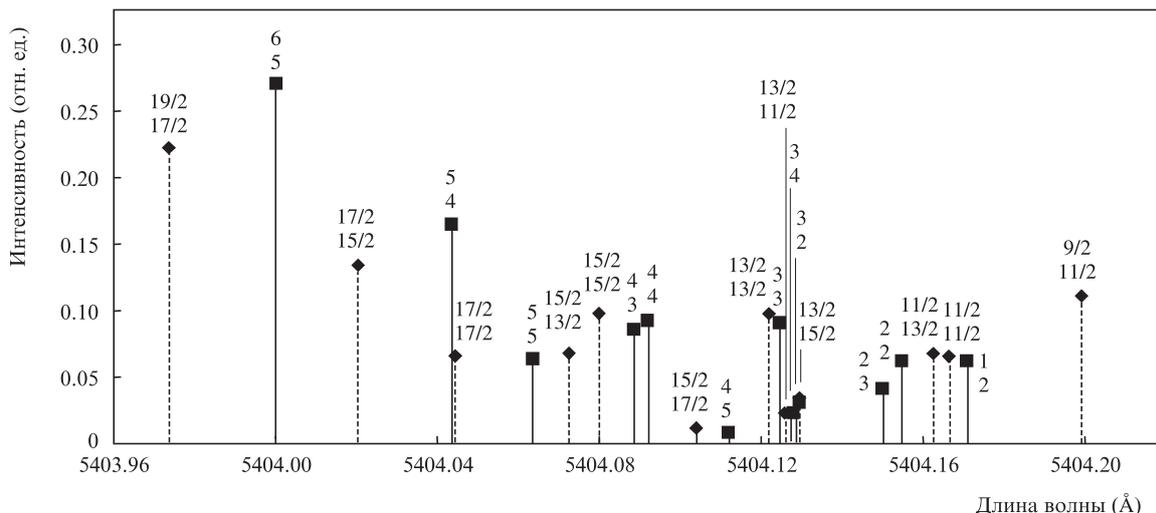


Рис.2. СТС перехода $5d\ 6s^2\ D_{3/2}(0\text{ см}^{-1}) \rightarrow 5d\ 6s\ 6p\ ^4F_{5/2}(18\ 505\text{ см}^{-1})$. Сплошные линии – компоненты ^{175}Lu , пунктирные – компоненты ^{176}Lu . Цифры над пиками – квантовые числа компонент СТС верхнего (вверху) и нижнего (внизу) уровней. Здесь и далее указаны длины волн в вакууме.

именно трехступенчатую схему фотоионизации. С точки зрения сил осцилляторов для первых двух ступеней возбуждения можно использовать переход $5d\ 6s^2\ ^2D_{3/2}(0\text{ см}^{-1}) \rightarrow 5d\ 6s\ 6p\ ^4F_{5/2}(18\ 505\text{ см}^{-1}) \rightarrow 5d\ 6s\ 7s\ ^4D_{3/2}(37\ 194\text{ см}^{-1})$ [6]. Важной является также величина изотопического сдвига ^{175}Lu и ^{176}Lu , особенно из-за того, что данные изотопы имеют взаимно перекрывающиеся сверхтонкие структуры (СТС) уровней. На рис.2 приведена сверхтонкая изотопическая структура перехода $5d\ 6s^2\ ^2D_{3/2}(0\text{ см}^{-1}) \rightarrow 5d\ 6s\ 6p\ ^4F_{5/2}(18\ 505\text{ см}^{-1})$. Относительные интенсивности пиков рассчитывались согласно [7] и приведены без учета концентрации изотопов.

Сверхтонкое расщепление ΔE_F относительно центра тяжести уровня для обоих изотопов рассчитывалось по известным для данного перехода константам A и B дипольного магнитного и квадрупольного электрического взаимодействий [8, 9]:

$$\Delta E_F = \frac{A}{2}K + \frac{B}{8} \frac{3K(K+1) - 4I(I+1)J(J+1)}{I(2I-1)J(2J-1)}$$

при $J \geq 1, I \geq 1$,

где I – спин ядра ($I = 7/2$ (^{175}Lu), $I = 7$ (^{176}Lu)); J – полный момент электронной оболочки; $K = F(F+1) - J(J+1) - I(I+1)$; F – полный момент атома ($F = I + J, I + J - 1, \dots, |I - J|$); если $J = 1/2$, то $B = 0$. Центр тяжести уровня E_{cg} определяется из соотношения

$$\sum_F (E_F - E_{cg})(2F + 1) = 0.$$

Несмотря на малый изотопический сдвиг (388 МГц [10]), некоторые компоненты ^{175}Lu и ^{176}Lu разнесены достаточно далеко друг от друга, что дает возможность проводить возбуждение ^{176}Lu с высокой селективностью. Эти переходы могут быть использованы для первой ступени возбуждения в трехступенчатой схеме фотоионизации лютеция.

2. Методы измерений

Исследование оптической схемы фотоионизации лютеция проводилось на установке, которая предназначена для спектроскопических экспериментов с узкими колли-

мированными атомными пучками, а также для определения изотопного состава ионов, образующихся при селективной лазерной фотоионизации. Установка состоит из вакуумной камеры с системой откачки и испарителем, квадрупольного масс-спектрометра MC-7302 и системы регистрации люминесценции. Для возбуждения атомов используется излучение одномодовых лазеров на красителях, накачиваемых ЛПМ. Ширина линии генерации лазера $\Delta\nu = 100$ МГц. Лазеры на красителях имеют возможность сканирования по длине волны с помощью изменения управляющего напряжения на дисперсионных элементах лазерных резонаторов [11]. Для контроля длины волны излучения применялся прецизионный измеритель (точность измерения ± 0.0002 Å). В вакуумной камере лазерный пучок пересекает атомный пучок непосредственно в ионизационной камере источника ионов квадрупольного масс-спектрометра. Направления атомного и лазерного пучков и ионо-оптической оси масс-спектрометра взаимно перпендикулярны. Регистрация ионов в масс-спектрометре проводилась вторично-электронным умножителем (ВЭУ). В установке имеется система для регистрации люминесценции фотоумножителем, особенностью которой является то, что спонтанное излучение регистрируется на ионно-оптической оси масс-спектрометра в направлении, обратном потоку ионов. Управление установкой и регистрация данных осуществлялись в режиме on-line. Программное обеспечение, реализованное в среде LabView (National Instruments), выполняло необходимые действия: принимало данные от измерителя длин волн, сигналы с фотоумножителя и ВЭУ и с помощью блока сопряжения изменяло управляющее напряжение, перестраивая либо стабилизируя тем самым лазеры по длине волны. Полученные данные сохранялись, происходила их обработка и оперативная оценка.

3. Экспериментальные результаты

Спектроскопическое исследование СТС второго перехода $18\ 505\text{ см}^{-1} \rightarrow 37\ 194\text{ см}^{-1}$, для которого нам не удалось найти данных в литературе, выполнено, по-видимому, впервые. Оно проводилось при настройке лазера на компоненты СТС первого перехода. Лазер второй ступени пере-

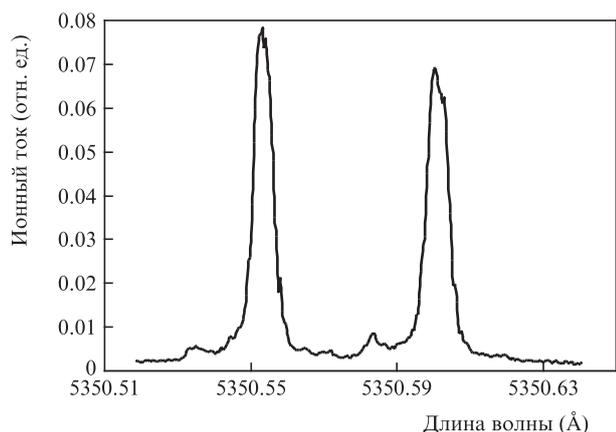


Рис.3. Ионный ток ^{176}Lu в зависимости от длины волны лазера второй ступени. Левый пик – переход $11/2 \rightarrow 13/2$, правый пик – переход $11/2 \rightarrow 11/2$ (первая ступень: $11/2 \rightarrow 11/2$, $\lambda = 5404.162 \text{ \AA}$).

Табл.1.

Изотоп	F	$E \text{ (cm}^{-1}\text{)}$	$\Delta E_F \text{ (cm}^{-1}\text{)}$	$E_{\text{сг}} \text{ (cm}^{-1}\text{)}$
^{176}Lu	11/2	37 193.67	-0.32	37 193.99
	13/2	37 193.84	-0.15	
	15/2	37 194.04	0.05	
	17/2	37 194.27	0.28	
^{175}Lu	2	37 193.74	-0.25	37 193.99
	3	37 193.85	-0.14	
	4	37 194.00	0.01	
	5	37 194.19	0.20	

страивался в окрестности линии с $\lambda = 5350 \text{ \AA}$ и возбуждал атомы на подуровни состояния $5d6s7s \ ^4D_{3/2}$, а излучение ЛПМ ионизировало атомы в континуум. На рис.3 приведен пример фотоионизационного спектра изотопа ^{176}Lu .

В табл.1 представлена структура второго возбужденного состояния лютеция, полученная в результате измерений. Необходимо отметить, что мы не обнаружили на этой ступени возбуждения сколь-нибудь заметного изотопического сдвига по сравнению с ^{175}Lu , и поэтому, как и на первой ступени, селективность разделения может быть обеспечена на отдельных компонентах СТС.

Использование автоионизационных переходов на этапе фотоионизации существенно снижает требование к мощности лазерной системы, что весьма положительно сказывается на стоимости АВЛИС-метода. Поиск автоионизационных переходов проводился посредством сканирования длины волны лазера третьей ступени при стабилизированных длинах волн лазеров первой и второй ступеней, настроенных на соответствующие компоненты СТС. Диапазон перестройки лазера в наших экспериментах составлял $6000\text{--}6300 \text{ \AA}$. Среди нескольких экспериментально обнаруженных автоионизационных переходов наиболее ярким является переход с $\lambda = 6180 \text{ \AA}$. Переход в автоионизационное состояние происходил с четырех уровней СТС второго возбужденного состояния $5d6s7s \ ^4D_{3/2}$: например, для ^{176}Lu с уровнями с $F = 11/2, 13/2, 15/2$ и $17/2$. Для компонент с $F = 11/2$ и $17/2$ наблюдался один резонансный пик, а для уровней с $F = 13/2$ и $15/2$ имелись два пика. С учетом правил отбора это означает наличие расщепления автоионизационного состояния на два уровня СТС с $F = 13/2$ и $15/2$ (рис.4). Аналогичная ситуация зарегистрирована и для изотопа ^{175}Lu , у которого автоионизационное состояние имеет структуру уровней с $F = 3$ и 4 .

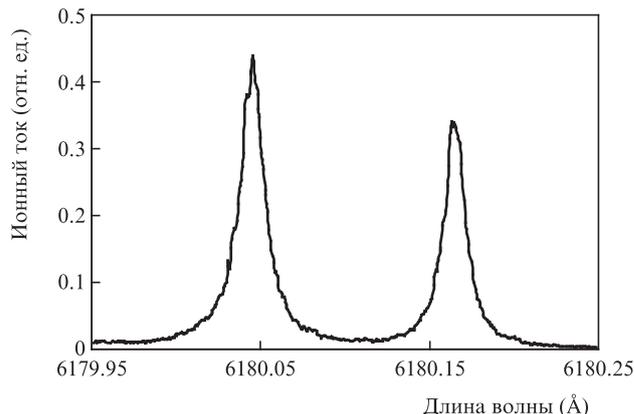


Рис.4. Ионный ток ^{176}Lu в зависимости от длины волны лазера третьей ступени. Левый пик – переход $15/2 \rightarrow 15/2$, правый пик – переход $15/2 \rightarrow 13/2$ (первая ступень – $\lambda = 5404.017 \text{ \AA}$, вторая ступень – $\lambda = 5350.655 \text{ \AA}$).

Табл.2.

Изотоп	F	$E \text{ (cm}^{-1}\text{)}$	$\Delta E_F \text{ (cm}^{-1}\text{)}$	$E_{\text{сг}} \text{ (cm}^{-1}\text{)}$	$A \text{ (ГГц)}$
^{175}Lu	3	53 374.89	-0.13	53 375.02	1.73
	4	53 375.12	0.10		
^{176}Lu	13/2	53 374.84	-0.16	53 375.00	1.24
	15/2	53 375.15	0.15		

Поскольку наблюдались переходы только на две компоненты СТС, то электронный момент уровня $J_{\text{ai}} = 1/2$. В табл.2 представлена структура автоионизационного уровня и константа A сверхтонкого взаимодействия. Поскольку $J_{\text{ai}} = 1/2$, то константа $B = 0$.

Погрешности в определении энергии уровней СТС (табл.1 и 2) мы оцениваем как 0.01 cm^{-1} , и связаны они в основном со следующими причинами: 1) неточностью определения положения пиков резонансов в экспериментальных спектрах, а также неточностью калибровки измерителя длин волн, которая проводилась по известным длинам волн в спектрах люминесценции; 2) нестабильностью лазерной длины волны, обусловленной тем, что контроль длин волн лазеров проводился последовательно с помощью одного измерителя.

4. Разделение изотопов

Температура испарения лютеция лишь незначительно превышает температуру испарения неодима, и, как показала практика, для лютеция может быть использована без каких-либо изменений разделительная ячейка, разработанная для разделения изотопов неодима. В табл.3 представлены результаты нескольких экспериментальных работ.

При концентрации ^{176}Lu в продукте $60\%\text{--}70\%$ удельная производительность разделительной ячейки оказывается примерно в 10 раз ниже, чем для ^{150}Nd . Это связано с тем, что исходная концентрация целевого изотопа ^{176}Lu в два раза ниже, чем у ^{150}Nd . Кроме того, в неодиме при ис-

Табл.3.

Производительность (мг/ч)	22.5	22.6	2.1	2.2	4.3	3.5	3.9
Концентрация изотопа ^{176}Lu (%)	29.3	32.1	45.3	47.7	60.5	67.9	68.9

пользовании основного и первого метастабильного состояний в процесс фотоионизации вовлекается соответственно 56% и 25% от числа атомов целевого изотопа. При выделении изотопа ^{176}Lu использовалась лишь одна компонента СТС первого перехода $17/2 \rightarrow 19/2$ (см. рис.2). В результате доля облученных атомов ^{176}Lu , вовлеченных в процесс фотоионизации, составляет 22%.

С увеличением входного потока атомов растет и производительность, однако одновременно снижается концентрация целевого изотопа в конечном продукте, что связано с рассеянием плотного атомного потока в рабочем объеме.

Производительность АВЛИС-установки по лютецию можно оценить как 10 г/сут., что, с учетом эксплуатационных расходов и современной конъюнктуры, позволяет рассчитывать на успешную коммерциализацию проектируемой установки.

5. Заключение

Впервые исследована СТС возбужденного и автоионизационного состояний стабильных изотопов ^{175}Lu и ^{176}Lu . Разработана схема фотоионизации атомов лютеция, пригодная для разделения изотопов АВЛИС-методом с использованием лазеров на красителях, накачиваемых ЛПМ. Проведены экспериментальные наработки обогащенного изотопа ^{176}Lu . Показано, что проектируемая промыш-

ленная АВЛИС-установка для получения обогащенного ^{150}Nd может быть без значительных изменений использована для производства обогащенного ^{176}Lu , имеющего стабильный спрос на рынке.

Авторы выражают благодарность А.П.Бабичеву и М.А.Бурлак за масс-спектрометрический анализ наработанных образцов обогащенного лютеция, а также А.В.Бобкову и А.Е.Серее за количественный химический анализ.

Работа поддержана грантами РФФИ №11-02-120034-офи-м-2011 и 12-08-00561-а-2012.

1. Ткачев А.Н., Яковленко С.И. *Квантовая электроника*, **25** (11), 971 (1998).
2. Бабичев А.П. и др. *Квантовая электроника*, **35** (10), 879 (2005).
3. Knapp F.F., Mirzadeh S., et al. *Proc. 5th Int. Conf. on Isotopes* (Brussels, 2005).
4. Беков Г.И., Видолова-Ангелова Е.П. *Квантовая электроника*, **8** (1), 227 (1981).
5. Xu C.B., Xu X.Y., Ma H., Li L.Q. *J. Phys. B: At. Mol. Opt. Phys.*, **26**, 2827 (1993).
6. Корлисс Ч., Бозман У. *Вероятности переходов и силы осцилляторов 70 элементов* (М.: Мир, 1968).
7. Axner O. et al. *Spectrochim. Acta, Part B*, **59**, 1 (2004).
8. Zimmermann D., Zimmermann P., Aepfelbach G., Kuhnert A. *Z. Physik. A*, **295**, 307 (1980).
9. Nunneman A., Zimmermann D., Zimmermann P. *Z. Physik. A*, **290**, 123 (1979).
10. Jin W.G., Wakasugi M., et al. *Phys. Rev. A*, **49** (2), 762 (1994).
11. Grigoriev I.S., Dyachkov A.B., et al. *Techn. Dig. Conf. on Laser Application and Technologies (LAT)* (Moscow, 2002, p.296).