

ЛАЗЕРНАЯ ФОТОИОНИЗАЦИЯ

Влияние усиленного спонтанного излучения на селективность лазерной фотоионизации радиоизотопа ^{177}Lu

А.Б.Дьячков, А.А.Горкунов, А.В.Лабозин, С.М.Миронов,
В.Я.Панченко, В.А.Фирсов, Г.О.Цветков

В экспериментах по селективной лазерной фотоионизации радиоизотопа ^{177}Lu по схеме $5d6s^2 2D_{3/2} \rightarrow 5d6s6p 4F_{5/2}^o$ (18505 см^{-1}) $\rightarrow 5d6s7s 4D_{3/2}$ (37194 см^{-1}) \rightarrow автоионизационное состояние (53375 см^{-1}) обнаружено существенное деселектирующее влияние усиленного спонтанного излучения, обусловленное вовлечением в процесс ионизации нецелевых изотопов с нижнего метастабильного уровня $5d6s^2 2D_{5/2}$ (1994 см^{-1}). Спектральная фильтрация спонтанного излучения позволила существенно повысить селективность процесса фотоионизации ^{177}Lu и при использовании насыщающих световых интенсивностей достичь значения селективности 10^5 .

Ключевые слова: селективность, лазерная фотоионизация, изотоп ^{177}Lu , лазер на красителе, усиленное спонтанное излучение, метастабильное состояние, масс-спектр.

1. Введение

Излучение импульсных лазеров на красителе (ЛК), которые до настоящего времени считаются наиболее эффективными для селективной фотоионизации изотопов в атомном паре, всегда содержит неселективное по частоте усиленное спонтанное излучение (УСИ). УСИ, наряду со стабильностью частоты и спектральной шириной линии, влияет на селективность процесса ступенчатой ионизации, и усилия разработчиков лазерных систем всегда направлены на достижение низкой интенсивности этой фоновой компоненты. Для её подавления применяются спектральная и пространственная фильтрации [1, 2], проводятся точное согласование длительностей импульсов излучения генерации и накачки, а также синхронизация моментов прихода импульсов в усилители ЛК [3]. Типичная относительная интенсивность УСИ для системы генератор – каскад усилителей составляет несколько процентов [4, 5], и, несмотря на то что спонтанное излучение высвечивается в широком спектральном диапазоне люминесценции лазерного красителя (десять нанометров), деселектирующее влияние фоновой составляющей может оказаться значительным.

Селективность S в случае лазерного разделения изотопов определяется отношением вероятностей фотоионизации целевого (W_p) и нецелевого (W_{np}) изотопов и может быть найдена экспериментально по содержанию фотоионов целевого изотопа C_p при его начальном содержании C_f :

$$S = \frac{W_p}{W_{np}} = \frac{C_p(1 - C_f)}{(1 - C_p)C_f}. \quad (1)$$

А.Б.Дьячков, А.А.Горкунов, А.В.Лабозин, С.М.Миронов, В.Я.Панченко, В.А.Фирсов, Г.О.Цветков. Национальный исследовательский центр «Курчатовский институт», Россия, 123182 Москва, пл. Акад. Курчатова, 1; e-mail: glebtsvetkov@mail.ru

Поступила в редакцию 21 января 2016 г.

Деселектирующее влияние УСИ связано с возбуждением нецелевых изотопов излучением из спектра спонтанного фона с последующей их ионизацией. Нетрудно получить оценку селективности S_{ASE} одноступенчатого процесса (или, например, ионизации по одноцветной двухступенчатой схеме), ограниченную только фоновой составляющей, через параметры лазерного излучения:

$$S_{ASE} \approx \frac{P/\Delta\nu}{P\alpha_{ASE}/\Delta\nu_{ASE}} = \frac{\Delta\nu_{ASE}}{\alpha_{ASE}\Delta\nu}, \quad (2)$$

где $\Delta\nu$ – ширина линии генерации; α_{ASE} – доля неселективного фонового излучения в лазерном пучке; $\Delta\nu_{ASE} = c\Delta\lambda_{ASE}/\lambda^2$; $\Delta\lambda_{ASE}$ – спектральная ширина УСИ; λ – длина волны; c – скорость света.

При типичных значениях $\Delta\nu = 100\text{--}120$ МГц; $\Delta\lambda_{ASE} = 20\text{--}40$ нм и $\alpha_{ASE} = 1\%\text{--}2\%$ селективность превышает 10^7 . Это существенно больше селективности, определяемой спектральным контрастом контура лазерной линии. При ширине лазерного контура 100 МГц (FWHM, гауссово распределение) световая интенсивность на спектральном расстоянии, соответствующем типичному изотопическому сдвигу ~ 1 ГГц, составляет $\sim 10^{-4}$ от интенсивности в центре линии, и, следовательно, селективность ограничена величиной $\sim 10^4$. Таким образом, в одноступенчатом процессе фоновая составляющая лазерного излучения практически не оказывает влияние на селективность. Этим, возможно, объясняется то, что нам не удалось найти работы, посвященные исследованию влияния УСИ на селективность лазерной фотоионизации.

На практике, однако, большинство схем фотоионизации имеют две или три ступени возбуждения в зависимости от потенциала ионизации разделяемого элемента. Даже если селективность достигается только на одном переходе, необходимо учитывать возможность возбуждения нецелевых изотопов фоновым излучением других неселективных ступеней:

$$S_{ASE} \approx \frac{P_1/\Delta\nu_1}{\sum_i \alpha_{ASE i} P_i/\Delta\nu_{ASE i}}, \quad (3)$$

где i – номер ступени возбуждения; P_i – мощность i -го лазера. При выводе этой формулы предполагалось, что в основном селективность процесса фотоионизации достигается на одной ступени возбуждения, фоновое излучение имеет равномерное распределение интенсивности по длинам волн, контур поглощения в атомном паре соответствует ширине линии лазерной генерации и суммирование проводится по ступеням, для которых фоновое излучение способно переводить атомы на верхний уровень селективного перехода.

Как правило, сечение резонансного возбуждения селективного перехода первой или второй ступеней $\sigma_{\text{exc}} = 10^{-12} - 10^{-13} \text{ см}^2$ на несколько порядков превышает сечение ионизации $\sigma_{\text{ion}} = 10^{-15} - 10^{-18} \text{ см}^2$. Соответственно для достижения эффективной фотоионизации интенсивность излучения последней ступени должна значительно превышать интенсивность излучения первых ступеней, что приведет, согласно (3), к пропорциональному снижению селективности. Кроме того, потери селективности возрастают, если генерация ионизирующего излучения происходит на краю контура усиления лазерного красителя, где величина α_{ASE} резко увеличивается и может достигать десятков процентов [6]. В результате, например, при $P_3 = 1000P_1$ и $\alpha_{\text{ASE}3} = 10\% - 20\%$ имеем $S_{\text{ASE}} \approx 10^3$, что сразу исключает возможность достижения высокого обогащения по изотопу с начальным содержанием $C_f < 10^{-3}$.

Сильное деселектирующее влияние фонового излучения в ионизирующем пучке было обнаружено нами в экспериментах по лазерной ионизации радиоизотопа ^{177}Lu [7], представляющего большой интерес для ядерной медицины в качестве перспективного терапевтического радионуклида [8–10]. Настоящая работа посвящена экспериментальному исследованию этого влияния и методов борьбы с ним с целью увеличения селективности фотоионизации.

2. Экспериментальная методика

Природный лютеций состоит из двух изотопов, ^{175}Lu и ^{176}Lu , с содержанием 97.4% и 2.6% соответственно. Для получения радиоизотопа ^{177}Lu ($T_{1/2} = 6.74$ дня) металлический лютеций облучался в течение суток потоком тепловых нейтронов $1.5 \times 10^{13} \text{ см}^{-2} \cdot \text{с}^{-1}$ (реакция нейтронного захвата $^{176}\text{Lu}(n, \gamma)^{177}\text{Lu}$). Начальное содержание радиоактивных атомов C_f , определенное методом гамма-спектрометрического анализа, составило 10^{-5} . Фотоионизация атомов лютеция проводилась по трёхступенчатой схеме через автоионизационное состояние (АИС, рис.1), исследованной ранее в работах [7, 11].

Возбуждение ^{177}Lu (спин ядра $I = 7/2$) осуществлялось через уровни сверхтонкой структуры со следующими значениями полного атомного момента F : $5 \rightarrow 6 \rightarrow 5 \rightarrow 4$. Ближайшие к линии сверхтонкой структуры ^{177}Lu (переход $5 \rightarrow 6$) линии нецелевых изотопов ^{175}Lu ($I = 7/2$) и ^{176}Lu ($I = 7$) отстояли от неё на -1.16 и 0.93 ГГц соответственно

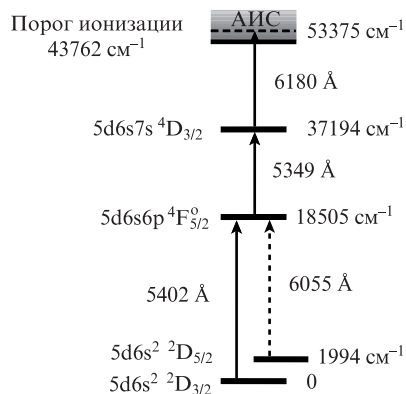


Рис.1. Схема трёхступенчатой фотоионизации LuI.

[7]. Фотоионизация проводилась излучением системы ЛК, которая состояла из трёх одномодовых задающих генераторов со стабилизацией длины волны [12] и усилителя излучения третьей ступени [13]. Накачка системы осуществлялась лазерами на парах меди. Основные параметры лазерной системы приведены в табл.1.

Лазерные пучки телескопировались до пучков диаметром 12 мм и коллимировались, их пространственное сведение в единый пучок проводилось на полупрозрачном и дихроичном зеркалах. Выходные мощности пучков отвечали измеренным ранее интенсивностям насыщения соответствующих переходов 10 мВт/см^2 , 10 мВт/см^2 и 3 Вт/см^2 [7]. Далее излучение направлялось в вакуумную камеру с высокотемпературным испарителем и квадрупольным масс-спектрометром МС-7302. Система диафрагм над испарителем ограничивала полный угол раскрытия атомного пучка до 3° (доплеровская ширина контура поглощения ~ 100 МГц). Лазерный пучок пересекал атомный пучок непосредственно в ионизационной камере источника ионов квадрупольного масс-спектрометра. Направления атомного и лазерного пучков, а также ионно-оптической оси масс-спектрометра были взаимно перпендикулярны. Регистрация ионов проводилась вторичным электронным умножителем.

3. Результаты и их обсуждение

Масс-спектр фотоионов, полученный в начальном эксперименте по селективной фотоионизации ^{177}Lu , приведен на рис.2,а. Сохранение заметного фонового фотоионного сигнала ^{175}Lu при блокировке пучка первой ступени свидетельствовало о наличии канала возбуждения нецелевых изотопов (^{175}Lu и ^{176}Lu) на первый уровень спонтанным усиленным излучением второй и/или третьей ступеней. При $\alpha_{\text{ASE}2} \approx 0.3\%$ и $P_2 = 10 \text{ мВт}$ деселектирующее влияние данного пучка, согласно (3), предельно мало. С другой стороны, фоновое излучение и мощность пучка третьей ступени значительно выше ($\alpha_{\text{ASE}3} = 15\%$, $P_3 =$

Табл.1. Основные параметры лазерной системы.

Номер ступени возбуждения	Центральная длина волны (Å) (краситель)	Длина волны накачки (нм)	Средняя выходная мощность (Вт)	α_{ASE} (%)	Спектральная ширина излучения (FWHM) (МГц)	Длительность импульса (FWHM) (нс)	Частота следования (кГц)
1	5402.6 (PM556)	510	0.1 – 0.3	0.3			
2	5349.1 (PM556)	510	0.1 – 0.3	0.3	100 – 120	15 – 20	10
3	6180.1 (SR640)	578	3 – 4	15			

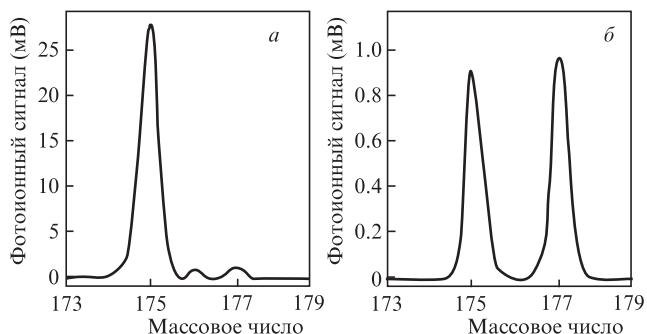


Рис.2. Масс-спектрограммы фототока изотопов лютеция без (а) и со спектральной фильтрацией УСИ в ионизирующем пучке (б). Начальное содержание изотопа ^{177}Lu составляло 10^{-5} .

3 Вт). Несмотря на то что спектр УСИ на этой ступени находится в стороне от длины волны первого перехода (540 нм), в нем присутствует излучение, переводящее атомы в первое возбужденное состояние с нижнего метастабильного уровня $5d6s^2\ ^2D_{5/2}$ (см. рис.1), населённость которого при температуре испарения лютеция $1600\text{ }^\circ\text{C}$ достаточно высока – около 0.2. При этом длина волны перехода $5d6s^2\ ^2D_{5/2} \rightarrow 5d6s6p\ ^4F_{3/2}$ (605.5 нм) близка к длине волны максимума люминесценции используемого красителя SR640. Подавление фоновой компоненты излучения лазера третьей ступени с помощью внешней дифракционной решетки привело практически к полному исчезновению фонового фотоионного сигнала ^{175}Lu .

Для определения причин возникновения высокой фоновой составляющей были исследованы спектральные зависимости средних мощностей излучения и УСИ лазера третьей ступени (рис.3). Минимальная величина $\alpha_{\text{ASE3}} \approx 0.4\%$ наблюдалась на длине волны максимума генерации красителя SR640 (607 нм). Её рост до 15% происходил на краю полосы генерации (618 нм), где из-за уменьшения сечения вынужденных (индуцированных) переходов лазерного красителя наблюдалось снижение темпа индуцированного съёма инверсии в активной среде и, как следствие, увеличение интенсивности спонтанной составляющей. Резкому росту α_{ASE3} способствовало уменьшение мощности генерации (рис.3) и, соответственно, интенсив-

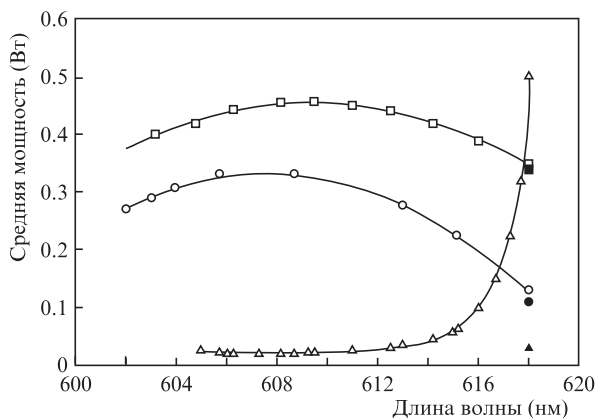


Рис.3. Зависимости средних мощностей излучения лазера третьей ступени (○ – генератор, □ – генератор + усилитель) и УСИ (△ – генератор + усилитель) от длины волны генерации. Точки ●, ■, ▲ соответствуют случаю внесения между генератором и усилителем дихроичного зеркала. Мощности накачки задающего генератора и усилителя 3 и 9 Вт соответственно, краситель SR640 (0.25 ммоль/л), растворитель этанол–вода (1/1).

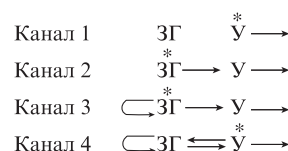


Рис.4. Схема четырёх каналов образования фонового излучения: ЗГ – задающий генератор; У – усилитель; звездочки и стрелки показывают начало и направление распространения спонтанного излучения.

ности излучения на входе в усилитель, а также уменьшение длительности импульса генерации.

Фоновое излучение на выходе системы генератор – усилитель ЛК образуется по четырём основным каналам, которые схематично представлены на рис.4. Первые два канала являются слабыми. Спонтанное излучение в них испытывает одно- и двукратное усиление в активной среде. Световые мощности УСИ, измеренные для канала 1 (при экранировке генератора) и каналов 1+2 (при экранировке глухого зеркала резонатора), даже в отсутствие генерации оказались малы и не превышали 10 мВт. При подключении каналов 3 и 4 (при экранировке поворотного зеркала резонатора) мощность УСИ возросла до 2.5 Вт. Несмотря на то что «разделить» каналы 3 и 4 довольно трудно, наибольший вклад в УСИ, очевидно, дает канал 4, где спонтанное излучение усиливается в активной среде максимальное число раз. В этом случае спонтанное излучение «стартует» из кюветы усилителя в направлении задающего генератора, проходит через кювету задающего генератора, отражается глухим зеркалом резонатора (схема с дифракционной решеткой в режиме скользящего падения) и возвращается в усилитель, тем самым усиливаясь на четырёх проходах. Очевидно, что если генерация происходит на краю перестроечной кривой, то внесение между задающим генератором и усилителем потерь для излучения в области максимума люминесценции красителя приведет к снижению фонового сигнала по каналам 2, 3, 4. Для этих целей было использовано зеркало с многослойным диэлектрическим покрытием, обеспечивающим высокое пропускание на длине волны 618 нм автоионизационного перехода ($T \approx 0.9$) и высокое отражение в диапазоне длин волн 603–610 нм максимальной люминесценции красителя SR640 ($R > 0.8$) (рис.5).

Как результат, величина α_{ASE3} для лазерного пучка третьей ступени снизилась в 25 раз (до 0.6%) без заметного снижения выходной световой мощности P_3 (см. рис.3).

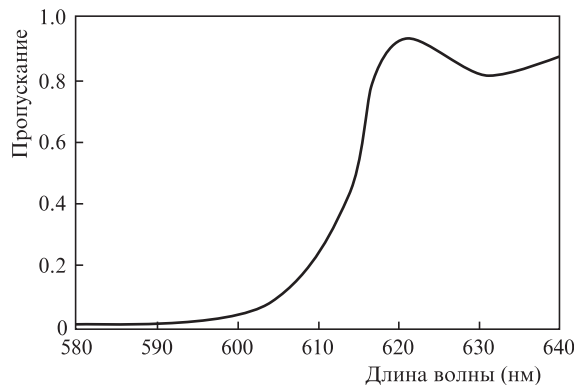


Рис.5. Зависимость пропускания зеркала от длины волны излучения (при нормальном падении).

Масс-спектр фотоионов, зарегистрированный в эксперименте по селективной фотоионизации ^{177}Lu с использованием такой спектральной фильтрации представлен на рис.2,б. Амплитуда тока для нецелевого изотопа ^{175}Lu уменьшилась более чем в 20 раз, содержание фотоионов изотопа ^{177}Lu составило 0,5, что при начальном содержании радиоизотопа $C_f = 10^{-5}$ соответствует селективности $S = 10^5$. Дополнительная очистка фоновой компоненты в ионизирующем пучке, выполненная с помощью внешней дифракционной решетки снижала токовый сигнал для изотопа ^{175}Lu только в два раза, что свидетельствует об эффективности применённой спектральной фильтрации УСИ.

Следует отметить, что образование фоновой составляющей по каналу 4 можно эффективно подавить, увеличивая расстояние между усилителем и генератором так, чтобы фоновое излучение из усилителя приходило в генератор к моменту окончания импульса его накачки. При длительности импульса накачки 25 нс такое расстояние должно превышать 4 м, что иногда бывает трудно реализовать на практике.

Перекрытое влияние УСИ на селективность многоступенчатой лазерной фотоионизации, когда фоновое излучение одной ступени влияет на селективность перехода другой ступени, может проявляться для целого ряда распространённых схем, используемых для селективной фотоионизации изотопов неодима, иттербия и др. Например, в схеме фотоионизации неодима (рис.6) фоновая компонента лазерного излучения третьей ступени может приводить к возбуждению нецелевых изотопов из метастабильного состояния с энергией 1128 см^{-1} (длина волны перехода 639 нм).

Для достижения высокой эффективности фотоионизации интенсивность излучения третьей ступени должна превышать интенсивности излучений первой и второй ступеней на два порядка [14], что при $\alpha_{\text{ASE}} \approx 10\%$ приведет к ограничению селективности до значения $\sim 10^4$.

При фотоионизации ^{168}Yb по схеме $556\text{ нм} \rightarrow 581\text{ нм} \rightarrow 583\text{ нм}$ [15], фоновая компонента излучения третьей ступени может вызвать возбуждение нецелевых изотопов по переходу второй ступени (581 нм), обладающему ббльшим

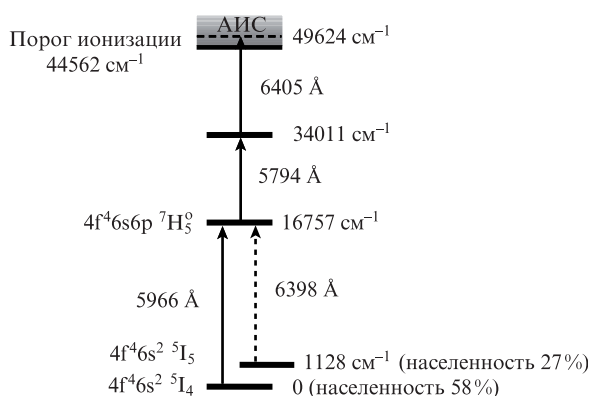


Рис.6. Схема трёхступенчатой фотоионизации Nd.

изотопическим сдвигом, по которому и достигалась основная селективность процесса фотоионизации.

4. Заключение

В экспериментах по селективной лазерной фотоионизации радиоизотопа ^{177}Lu было обнаружено, что УСИ может оказывать значительное влияние на селективность многоступенчатого процесса. Снижение селективности происходит, если в спектр фонового излучения какой-либо ступени (как правило ступени фотоионизации) попадают переходы из основного или нижних метастабильных атомных уровней на возбужденные уровни, что приводит к вовлечению в процесс ионизации нецелевых изотопов. Оценка и результаты эксперимента показывают, что в ряде случаев селективность ионизации может быть ограничена величиной $\sim 10^3$, что исключает возможность получения высокого обогащения по изотопу с начальным содержанием менее 10^{-3} . Для достижения более высокой селективности необходимо уделять особое внимание выбору схемы фотоионизации, учитывая спектральные генерационные характеристики лазерного красителя (последней ступени). Эффективной может стать спектральная фильтрация фонового излучения описанным в настоящей работе способом.

Авторы выражают благодарность Т.Н.Цветковой и Г.Г.Шаталовой за помощь в обработке экспериментальных результатов, а также Р.Хенкельману (ITG Isotope Technologies Garching GmbH) за плодотворные дискуссии.

Работа поддержана грантами РФФИ № 14-22-03037 (в части подготовки лазерной системы) и 14-29-04070 (в части подготовки радиоактивного образца).

- Wallenstein R., Hänsh T.W. *Opt. Commun.*, **14**, 353 (1975).
- Przybylski M., Otto B., Gerhardt H. *Appl. Phys. B*, **49**, 201 (1989).
- Mckee T.J., Lobin J., Young W.A. *Appl. Opt.*, **21**, 725 (1982).
- Bass I.L., Bonnano R.E., Hackel R.P., Hammond P.R. *Appl. Opt.*, **31**, 6993 (1992).
- Doizi D., Jaraudias J., Pochon E., Salvetat G. *Proc. SPIE Int. Soc. Opt. Eng.*, **1859**, 117 (1993).
- Maruyama Y., Kato M., Arisawa T. *Opt. Eng.*, **35**, 1084 (1996).
- D'yachkov A.B., Firsov V.A., Gorkunov A.A., Labozin A.V., Mironov S.M., Panchenko V.Y., Shatalova G.G., Tsvetkov G.O. *Appl. Phys. B*, **121**, 425 (2015).
- NuPECC Report 'Nuclear Physics for Medicine': 136 (2014).
- Kwekkeboom D.J., de Herder W.W., Kam B.L., van Eijck C.H., van Essen M., Kooij P.P., Feelders R.A., van Aken M.O., Krenning E.P. *J. Clin. Oncol.*, **26**, 2124 (2008).
- Khan S., Krenning E.P., van Essen M., Kam B.L., Teunissen J.J., Kwekkeboom D.J. *J. Nucl. Med.*, **52**, 1361 (2011).
- Дьячков А.Б., Ковалевич С.К., Лабозин А.В., Лабозин В.П., Миронов С.М., Панченко В.Я., Фирсов В.А., Цветков Г.О., Шаталова Г.Г. *Квантовая электроника*, **42**, 953 (2012).
- Grigoriev I.S., Diachkov A.B., Kuznetsov V.A., Labozin V.P., Firsov V.A. *Proc. SPIE Int. Soc. Opt. Eng.*, **5121**, 411 (2003).
- Григорьев И.С., Дьячков А.Б., Лабозин В.П., Миронов С.М., Никулин С.А., Фирсов В.А. *Квантовая электроника*, **34**, 447 (2004).
- Бабичев А.П., Григорьев И.С. и др. *Квантовая электроника*, **35**, 879 (2005).
- Ткачев А.Н., Яковленко С.И. *Квантовая электроника*, **33**, 581 (2003).