

ЛАЗЕРНОЕ ИЗЛУЧЕНИЕ ИЗОТОПОВ

Экспериментальное исследование степени извлечения целевого изотопа в процессе лазерного фотоионизационного разделения изотопов лютеция**А.Б.Дьячков, А.А.Горкунов, А.В.Лабозин, С.М.Миронов, В.Я.Панченко, В.А.Фирсов, Г.О.Цветков**

Исследуется вопрос о степени извлечения целевого изотопа применительно к задаче выделения радиоизотопа ^{177}Lu лазерным фотоионизационным методом с использованием разработанной эффективной трехступенчатой схемы $5d6s^2D_{3/2} - 5d6s6p\ ^4F_{3/2} - 5d6s7s\ ^4D_{3/2} - 53375.049\ \text{см}^{-1}$.

Ключевые слова: лазерное разделение изотопов, лазерная фотоионизация атомов, радиоизотоп ^{177}Lu .

1. Введение

Одним из важнейших параметров любого процесса разделения изотопов является степень извлечения целевого изотопа – его доля, извлекаемая из потока питания (исходного сырья) в поток продукта. При использовании лазерного фотоионизационного метода целевой изотоп, селективно ионизированный лазерным излучением, попадает на коллектор за счет экстракции его из потока электрическим полем. Одновременно происходит деселектирующий процесс, связанный с рассеянием нейтральных атомов в рабочем объеме. Вследствие редких столкновений, происходящих в разреженном паре, небольшая доля атомов отклоняется от прямолинейного движения и имеет возможность также попасть на коллектор продукта. В результате изотопически селективный поток фотоионов смешивается с неселективным потоком рассеянных атомов, что ведет к снижению концентрации целевого изотопа в продукте. С увеличением степени извлечения целевого изотопа за счет фотоионизации возрастает не только производительность процесса, но и концентрация целевого изотопа в продукте, поэтому для лазерного метода этот параметр имеет большое значение [1].

Степень извлечения целевого изотопа зависит от интенсивности лазерного излучения на каждой ступени схемы фотоионизации. С увеличением интенсивности степень извлечения растет практически линейно при малых интенсивностях, а при дальнейшем увеличении интенсивности наблюдается замедление роста и происходит насыщение. Физическая причина насыщения заключается в опустошении основного состояния атомов. В этом случае можно считать, что все атомы, находившиеся на начальном уровне, переводятся в фотоионы. Например, при фотоионизации радиоизотопа ^{177}Lu с подуровня с $F = 5$ сверхтонкой структуры ($F = 2, 3, 4, 5$) основного состояния $5d6s^2D_{3/2}$ степень извлечения может достигать

$0.34 \cdot 0.7 = 0.24$, где множитель 0.7 – населенность основного состояния при температуре испарения лютеция 1700°C , а множитель 0.34 – доля атомов, находящихся на подуровне с $F = 5$.

С формальной точки зрения насыщение переходов является необходимым условием для полной фотоионизации, но не достаточным. Строго говоря, возможны ситуации, при которых насыщение не будет приводить к полному извлечению атомов, находящихся в основном состоянии. Например, возможна ситуация, когда в схеме фотоионизации на одном из последовательных этапов происходит распад (деактивация) возбужденного состояния. Дело в том, что при поиске схемы фотоионизации далеко не всегда удается использовать заранее известные из литературы уровни. Часто приходится искать новые, как правило высоколежащие уровни и переходы, сканируя длину волны лазера второй или третьей ступени и фиксируя фотоионные резонансы. При этом обнаружение фотоионного резонанса еще не означает, что возбуждение атомов происходит именно с того уровня, на который их возбуждает излучение лазера предыдущей ступени. Возможно, что последний уровень распадается на несколько нижележащих состояний и обнаруженный переход осуществляет возбуждение атомов уже из одного из этих состояний. В этом случае доля атомов, которые будут переводиться в фотоионы, определяется схемой распада даже в случае насыщения сигнала, и это может приводить к значительным потерям атомов целевого изотопа. На практике для подтверждения высокой эффективности выбранной схемы фотоионизации используется прямое измерение степени извлечения [2].

2. Эксперимент

Для прямого измерения степени извлечения за счет фотоионизации используется установка (рис.1), состоящая из вакуумной камеры с системой откачки 1, термического испарителя 2, квадрупольного масс-спектрометра MS-7302 3, оптической многопроходной системы и экстракционной системы. Установленная над испарителем система диафрагм формирует узкий атомный пучок 4 (ортogonalный лазерному пучку) с углом раскрытия 3° (доплеровская ширина линии поглощения $\sim 100\ \text{МГц}$).

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 23 июля 2018 г.

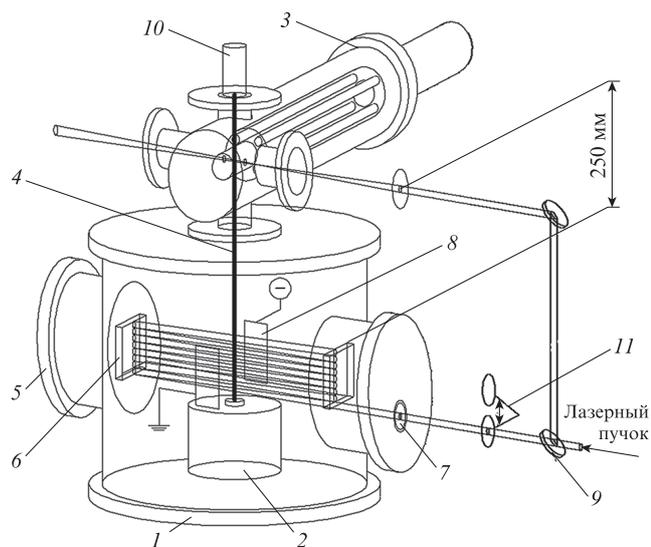


Рис.1. Установка для прямого измерения степени извлечения, достигаемого за счет фотоионизации:

1 – вакуумная камера; 2 – термический испаритель; 3 – квадрупольный масс-спектрометр МС-7302; 4 – атомный пучок; 5 – фланец многопроходной системы; 6 – зеркало многопроходной системы; 7 – окно для ввода лазерного излучения; 8 – экстракционная система; 9 – полупрозрачное зеркало; 10 – кварцевый датчик напыления; 11 – заслонка лазерного пучка.

Многопроходная оптическая система представляет собой два вакуумных фланца 5, на каждом из которых лазерные зеркала 6 закреплены на подвижных узлах, осуществляющих юстировку зеркал со стороны атмосферы. Один из фланцев имеет окно 7 для ввода в камеру лазерного излучения. Многопроходная система за счет многократных отражений лазерного пучка (диаметром 1 см) формирует рабочий объем с поперечным сечением размером 1×8 см. Атомный пучок, выходя из испарителя, попадает в освещенную зону протяженностью 8 см вдоль направления распространения пучка, что при частоте следования лазерных импульсов 10 кГц обеспечивает вероятность 0.97 облучения каждого атома не менее одного раза. В непосредственной близости от рабочего объема находится экстракционная система 8, состоящая из отрицательно заряженного коллектора фотоионов и заземленного дефлектора, предназначенного для выравнивания напряженности электрического поля. В направлении распространения атомного пучка на расстоянии 250 мм от рабочего объема установлен квадрупольный масс-спектрометр. Пучок атомов, прошедших через рабочий объем, попадает в ионизационную камеру масс-спектрометра, где пересекается с тестирующим лазерным пучком, ответвленным от основного лазерного пучка, состоящего из трех соосных пучков лазерного излучения на разных длинах волн, с помощью делительной пластины 9. Зона взаимодействия тестирующего лазерного пучка с атомным пучком в масс-спектрометре имеет форму цилиндра с длиной 2 мм и диаметром 2 мм (определяется размером диафрагмы, установленной на пути лазерного пучка непосредственно перед зоной взаимодействия). Оси атомного и лазерного пучков и ионно-оптическая ось масс-спектрометра взаимно ортогональны. Регистрация ионов проводится вторичным электронным умножителем (ВЭУ).

Над масс-спектрометром размещен датчик кварцевого измерителя толщины пленки «Микрон-5» (ООО

«Изовак», Республика Беларусь), позволяющий измерять интенсивность атомного пучка, прошедшего через рабочий объем и область взаимодействия масс-спектрометра.

Параметры эффективности фотоионизации определяются по изменениям сигналов масс-спектрометра и кварцевого датчика, которые происходят при открытии и закрытии заслонки 11 лазерного пучка. При этом изменение сигнала масс-спектрометра при регистрации фотоионов, производимых тестирующим пучком, определяет степень опустошения начального уровня атома. Уменьшение сигнала от кварцевого датчика позволяет измерить ослабление атомного потока за счет фотоионизационного извлечения целевого изотопа.

Для селективной фотоионизации использовалось излучение одномодовых импульсных лазеров на красителях с накачкой излучением лазеров на парах меди: спектральная ширина линии генерации 100–120 МГц, длительность импульсов 20 нс, частота следования импульсов 10 кГц. Подробную информацию о лазерном комплексе и его рабочих характеристиках можно найти в [3, 4].

3. Результаты и их обсуждение

Экспериментальные исследования проводились с лютецием природного изотопного состава. Для увеличения чувствительности измерений длины волн излучения лазеров настраивались на фотоионизацию изотопа ^{175}Lu (его природная концентрация $C_{175} = 0.97$). Полученные значения параметров эффективности фотоионизации могут быть непосредственно отнесены к радиоизотопу ^{177}Lu , поскольку атомы этих изотопов имеют одинаковые ядерные спины ($7/2$) и, следовательно, похожую сверхтонкую структуру (рис.2). По аналогии с радиоизотопом ^{177}Lu основное состояние ^{175}Lu состоит из четырех подуровней с квантовыми числами $F = 2, 3, 4, 5$, которые заселены пропорционально их статистическим весам $2F + 1$. Например, при фотоионизации с подуровня с $F = 5$ максимальная степень извлечения составляет $0.34 \cdot 0.7 = 0.24$, где множитель 0.7 – населенность основного состояния при температуре испарения лютеция 1700°C , а множитель 0.34 – доля атомов, находящихся на подуровне с $F = 5$.

Степень извлечения α определялась по формуле

$$\alpha = \frac{\Phi_1 - \Phi_2}{C_{175} \Phi_1}, \quad (1)$$

где Φ_1 и Φ_2 – показания кварцевого датчика при открытой и закрытой заслонке 11 соответственно, а степень опустошения основного состояния – по формуле

$$\rho = \frac{I_1 - I_2}{I_1}, \quad (2)$$

где I_1 и I_2 – фотоионные токи, измеряемые масс-спектрометром, настроенным на массу 175, при открытой и закрытой заслонке 11 соответственно. В табл.1 представлены степени извлечения и опустошения основного состояния, которые получены при использовании переходов между компонентами сверхтонкой структуры уровней $^2\text{D}_{3/2}$ ($F = 5$), $^4\text{F}_{5/2}^o$ ($F = 6$), $^4\text{D}_{3/2}$ ($F = 5$) и $\text{X}_{1/2}$ ($F = 4$) (схема фотоионизации 5–6–5–4).

В табл.2 представлены результаты измерения степени извлечения, полученные при использовании других воз-

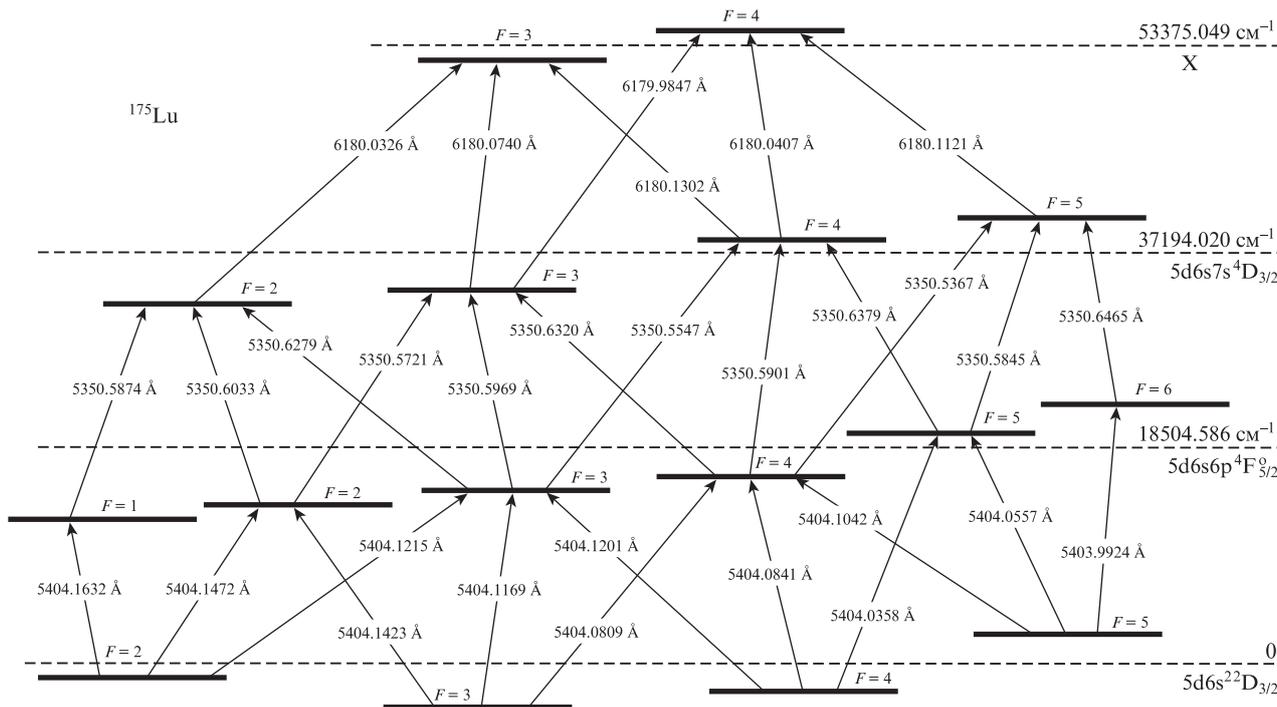


Рис.2. Схемы возможных каналов фотоионизации ¹⁷⁵Lu. Буквой X обозначен уровень с энергией 53375.049 см⁻¹, электронная конфигурация которого неизвестна.

Табл.1. Параметры схемы фотоионизации 5–6–5–4.

Средняя интенсивность лазерного излучения (Вт/см ²)			Степень опустошения основного состояния	Степень извлечения
первая ступень	вторая ступень	третья ступень		
0.025	0.025	2.5	0.88 ± 0.05	0.17 ± 0.03

Табл.2. Измеренные степени извлечения при использовании различных каналов фотоионизации (за единицу взят результат измерений для схемы 5–6–5–4, представленный в табл.1).

Схема фотоионизации	Относительная населенность начального состояния	Относительная степень извлечения
5–6–5–4	1	1
4–4–5–4	0.81	0.75 ± 0.1
3–4–5–4	0.62	0.6 ± 0.1
2–1–2–3	0.46	0.5 ± 0.1

можных каналов фотоионизации. Из нее видно, что степень извлечения хорошо коррелирует с населенностью начального состояния.

Для увеличения селективности можно использовать задержку лазерных импульсов второй и третьей ступеней относительно импульса первой ступени, используя тот факт, что время жизни первого возбужденного состояния достаточно велико и составляет 472 нс [5]. Однако при такой задержке неизбежно снижение степени извлечения, поскольку фотоионизации подвергаются не все атомы, находившиеся на начальном подуровне с $F = 5$, а только часть атомов, заселивших первое возбужденное состояние с $F = 6$ после окончания лазерного импульса первой ступени. Доля этих атомов в режиме насыщения равна отношению $g_2/(g_1 + g_2) = 0.54$, где g_1 и g_2 – статистические веса $2F + 1$ основного и первого возбужденных состояний соответственно. Непосредственные измерения показали,

что при задержке лазерных импульсов второй и третьей ступеней на 18 нс степень извлечения составляет 0.6 ± 0.1 от максимального значения, измеренного при синхронных импульсах, что находится в хорошем согласии с приведенной оценкой.

4. Времена жизни уровней

Достигнутая в экспериментах максимальная степень извлечения 0.17 составляет 0.7 от теоретического предела. Для выяснения причины неполного извлечения были рассмотрены времена жизни возбужденных состояний схемы фотоионизации.

Первое возбужденное состояние $5d6s6p^4F_{5/2}^o$ является долгоживущим (время жизни 472 ± 24 нс) [5]. Информации о времени жизни второго возбужденного состояния $5d6s7s^4D_{3/2}$ в научной печати не найдено. Согласно [6] в спектральном диапазоне 5057–7758 Å существуют семь каналов быстрого распада данного уровня в результате дипольных переходов, поэтому время его жизни должно быть малым, порядка 1–10 нс [5].

Время жизни уровня $5d6s7s^4D_{3/2}$ определялось экспериментально. Лазерные импульсы первой и второй ступеней (совмещенные по времени) при средней интенсивности в пучках ~ 10 мВт/см² существенно заселяли этот уровень. По окончании импульсов возбуждения в рабочий объем поступал ионизирующий импульс (третья ступень). Величина фотоионного сигнала была пропорциональна населенности уровня $5d6s7s^4D_{3/2}$ в момент прихода ионизирующего импульса. Фототок измерялся при разных временных задержках этого импульса, для чего в оптическом пути пучка использовалась пространственная линия задержки с переменной длиной (до 12 м, или до 40 нс). На рис.3 приведены значения фотоионного сигнала при различных задержках импульса ионизации относительно лазерного импульса первой ступени. Экспериментальные точ-

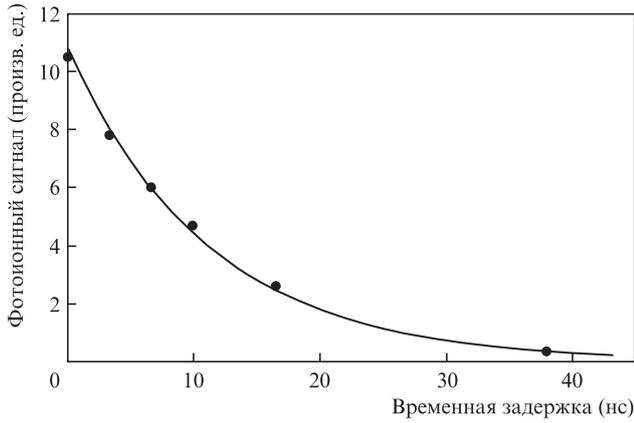


Рис.3. Зависимость фотоионного сигнала ^{175}Lu от временной задержки ионизирующего импульса лазера относительно лазерного импульса первой ступени (точки) и аппроксимирующая кривая: $y = 10.8\exp(-x/11.5)$.

ки хорошо легли на экспоненциальную кривую распада с постоянной времени 11.5 нс.

5. Влияние на степень извлечения распада второго возбужденного состояния

Оценить влияние распада второго возбужденного состояния $5d6s7s^4D_{3/2}$ на степень извлечения можно путем рассмотрения многоступенчатой фотоионизации с использованием уравнений усредненного баланса частиц в различных состояниях, так называемых скоростных уравнений [7]:

$$\frac{dN_1}{dt} = -N_1w_{12} + N_2w_{12}, \quad (3)$$

$$\frac{dN_2}{dt} = N_1w_{12} - N_2(w_{12} + w_{23} + a_{2m}) + N_3w_{23}, \quad (4)$$

$$\frac{dN_3}{dt} = N_2w_{23} - N_3(w_{23} + w_{34} + a_{3m}) + N_4w_{34}, \quad (5)$$

$$\frac{dN_4}{dt} = N_3w_{34} - N_4a_i, \quad (6)$$

$$\frac{dN_i}{dt} = N_4a_i, \quad (7)$$

$$\frac{dN_m}{dt} = N_2a_{2m} + N_3a_{3m}, \quad (8)$$

где N_1, N_2, N_3 и N_4 — число частиц в основном, первом, втором и автоионизационном состояниях соответственно; N_i — число фотоионов; a_i — скорость фотоионизации из автоионизационного состояния; N_m — число частиц, выведенных из системы за счет распада второго и третьего состояний; $w_{ij} = I_{ij}\sigma_{ij}/(h\nu_{ij})$ — частота лазерно-индуцированных переходов из состояния i в состояние j ; I_{ij} — интенсивность лазерного излучения; σ_{ij} — сечение перехода; ν_{ij} — частота перехода; a_{im} — частота распадов состояния i в метастабильные состояния. В этих уравнениях мы пренебрегли статистическими весами квантовых состояний, а также процессами спонтанного распада, обратными вынужденным лазерно-индуцированным переходам.

Решение этой системы в общем виде достаточно сложно, однако в ряде практически важных случаев возможны простые решения, позволяющие понять характер влияния различных факторов. Рассмотрим частный случай, когда частота лазерно-индуцированных переходов на третьей ступени w_{23} оказывается значительно меньше частот первого и второго переходов, которые, в свою очередь, много меньше скорости фотоионизации a_i :

$$a_i \gg w_{12} \approx w_{23} \gg w_{34} \approx a_{3m}. \quad (9)$$

Пренебрежем также спонтанным распадом первого возбужденного состояния, считая что время жизни этого уровня много больше длительности лазерного импульса, т.е.

$$a_{2m} = 0. \quad (10)$$

Пусть возбуждающие лазерные импульсы имеют прямоугольную форму, длительность τ и точно синхронизированы по времени с началом при $t = 0$. В этом случае в системе уравнений появляются два временных масштаба. На быстром временном масштабе порядка $1/w_{12} \approx 1/w_{23}$ устанавливается распределение частиц в основном и возбужденных состояниях

$$N_1 = N_2 = N_3 = (N_1 + N_2 + N_3)/3, \quad (11)$$

$$N_4 = \frac{N_3w_{34}}{a_i}. \quad (12)$$

После того, как это распределение установилось, система возбужденных уровней квазистационарно «следит» за населенностью второго возбужденного состояния (N_3), которая меняется медленно в соответствии с другим масштабом времени — $1/w_{34}$. Далее, рассматривая медленный масштаб времени, суммируем уравнения (3), (4), (5) и, используя (11), получаем уравнение для суммарной населенности

$$\frac{d(N_1 + N_2 + N_3)}{dt} = -\frac{(N_1 + N_2 + N_3)}{3}(w_{34} + a_{3m}) \quad (13)$$

с начальным условием

$$(N_1 + N_2 + N_3)|_{t=0} = N_0. \quad (14)$$

Решение этого уравнения для N_3 имеет вид

$$N_3(t) = \frac{N_0}{3} \exp\left(-\frac{w_{34} + a_{3m}}{3}t\right). \quad (15)$$

Подставляя его в (12), а затем в (7) и интегрируя по времени от нуля до τ , получаем выражение для доли атомов, фотоионизованных к моменту окончания лазерного импульса:

$$\frac{N_i}{N_0} = \frac{w_{34}}{w_{34} + a_{3m}} \left[1 - \exp\left(-\frac{w_{34} + a_{3m}}{3}\tau\right)\right]. \quad (16)$$

Нетрудно видеть, что при учете статистических весов состояний множитель $1/3$ в экспоненте следует заменить на отношение $g_3/(g_1 + g_2 + g_3)$.

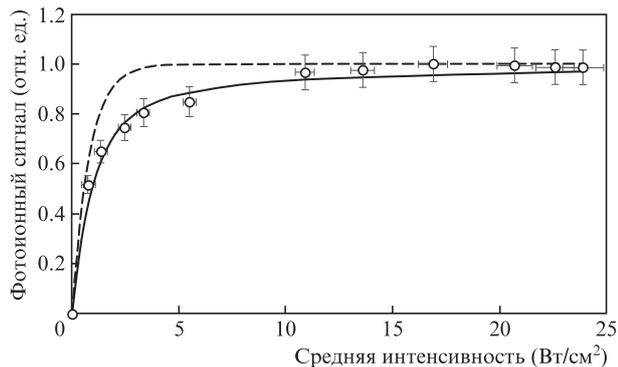


Рис.4. Зависимость фотоионного сигнала от средней интенсивности лазерного излучения третьей ступени (экспериментальные точки). Сплошная кривая – расчет по формуле (16) при сечении $\sigma_{34} = 1.2 \times 10^{-14} \text{ см}^2$ и частоте распадов $a_{3m} = 87 \text{ МГц}$, штриховая кривая – то же, но при $a_{3m} = 0$.

Множитель $w_{34}/(w_{34} + a_{3m})$ в (16) описывает конкуренцию процессов фотоионизации и спонтанного распада второго возбужденного состояния. Этот множитель относительно быстро (при $w_{34} = a_{3m}$) достигает значения 0.5, однако дальнейший его рост с увеличением w_{34} сильно замедляется, и даже при $w_{34} = 5a_{3m}$ множитель составляет всего 0.83. Достижение степени фотоионизации свыше 0.9 требует настолько значительного увеличения w_{34} , что это, по-видимому, выходит за рамки рациональности.

На рис.4 представлена экспериментальная зависимость фотоионного сигнала от интенсивности лазерного излучения третьей ступени. Видно, что сигнал продолжает расти вплоть до средней интенсивности 15 Вт/см^2 . Эта зависимость хорошо согласуется с рассчитанной по формуле (16) при сечении $\sigma_{34} = 1.2 \times 10^{-14} \text{ см}^2$ и частоте распадов $a_{3m} = 87 \text{ МГц}$, соответствующей времени жизни второго возбужденного состояния. При средней интенсивности лазерного излучения третьей ступени 2.5 Вт/см^2 , используемой в экспериментах, сигнал достигает ~ 0.7 от своего максимального значения, что соответствует результатам измерения степени извлечения за счет фотоионизации.

6. Заключение

Прямые измерения степени извлечения целевого изотопа показали, что в разработанной трехступенчатой схеме фотоионизации лютеция относительно легко достигается степень извлечения 0.7–0.8 от теоретического предела, который с учетом населенности основного состояния составляет 70%. Дальнейшее существенное увеличение степени извлечения затрудняется конкуренцией между возбуждением атома из второго возбужденного состояния и распадом этого состояния, время жизни которого было измерено и составило $11.5 \pm 0.5 \text{ нс}$. Повышение селективности фотоионизации за счет задержки лазерных импульсов второй и третьей ступеней относительно импульса первой ступени приводит к снижению степени извлечения на 40%, что соответствует теоретической оценке. Результаты наших экспериментов являются хорошей основой для разработки лазерного фотоионизационного метода получения радионуклида ^{177}Lu для применения в медицине.

Исследование выполнено за счет гранта Российского научного фонда (проект № 17-13-01180).

1. Ковалевич С.К., Лабозин В.П., Цветков Г.О. *ЖТФ*, **75** (1), 98 (2005).
2. Бабичев А.П., Григорьев И.С., Григорьев А.И., Доровский А.П., Дьячков А.Б., Ковалевич С.К., Кочетов В.А., Кузнецов В.А., Лабозин В.П., Матрахов А.В., Миронов С.М., Никулин С.А., Песня А.В., Тимофеев Н.И., Фирсов В.А., Цветков Г.О., Шаталова Г.Г. *Квантовая электроника*, **35** (10), 879 (2005) [*Quantum Electron.*, **35** (10), 879 (2005)].
3. Дьячков А.Б., Горкунов А.А., Лабозин А.В., Миронов С.М., Панченко В.Я., Фирсов В.А., Цветков Г.О. *Квантовая электроника*, **48** (1), 75 (2018) [*Quantum Electron.*, **48** (1), 75 (2018)].
4. Дьячков А.Б., Горкунов А.А., Лабозин А.В., Миронов С.М., Панченко В.Я., Фирсов В.А., Цветков Г.О. *Квантовая электроника*, **46** (6), 574 (2016) [*Quantum Electron.*, **46** (6), 574 (2016)].
5. Fedchak J.A. et al. *Astrophys. J.*, **542**, 1109 (2000).
6. Meggers W.F., Corliss C.H., Scribner V.F. *Tables of Spectral-line Intensities Arranged by Elements, NBS Monograph* (Washington, 1975, vol.145, pt1).
7. Ткачев А.Н., Яковленко С.И. *Квантовая электроника*, **23** (9), 860 (1996) [*Quantum Electron.*, **26**, 839 (1996)].