

## Разработка лазерной системы лабораторного АВЛИС-комплекса для получения изотопов и радионуклидов

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

*Рассмотрен вопрос о применении лазерного АВЛИС-метода разделения изотопов для решения актуальных задач – получения радионуклидов  $^{177}\text{Lu}$  для медицинских применений и  $^{63}\text{Ni}$  для бета-вольтаических источников питания, а также изотопа  $^{150}\text{Nd}$  для поиска безнейтринного двойного бета-распада и массы нейтрино. Разработана эффективная трехступенчатая схема фотоионизации атомов неодима через автоионизационное состояние с энергией  $50474\text{ см}^{-1}$  с длинами волн излучений соответствующих ступеней  $\lambda_1 = 6289.7\text{ \AA}$ ,  $\lambda_2 = 5609.4\text{ \AA}$  и  $\lambda_3 = 5972.1\text{ \AA}$ . Средняя интенсивность насыщения автоионизационного перехода составила  $\sim 6\text{ Вт/см}^2$ , что отвечает характеристикам ранее разработанных схем фотоионизации лютеция и никеля. На основе экспериментальных результатов создана компактная лазерная система технологического АВЛИС-комплекса для получения радионуклидов и изотопов в лабораторных условиях.*

**Ключевые слова:** лазерное разделение изотопов, лазер на парах меди, лазер на красителе, автоионизационное состояние.

### 1. Введение

Развитие технологии получения изотопов и радионуклидов привело в последние годы к возникновению ряда задач, для решения которых применение лазерного АВЛИС-метода (AVLIS – atomic vapor laser isotope separation) [1, 2] является многообещающим с точки зрения снижения затрат и повышения безопасности этой технологии. К таким задачам следует отнести получение радионуклидов  $^{177}\text{Lu}$  для медицинских применений и  $^{63}\text{Ni}$  для бета-вольтаических автономных источников питания, а также выделение изотопа  $^{150}\text{Nd}$  из природной смеси (его природное содержание составляет 5.6%) для поиска двойного безнейтринного бета-распада и массы нейтрино. Один из факторов, сдерживающих развитие АВЛИС-метода, – высокая стоимость лазерного излучения. Поэтому возможность его эффективного использования играет решающую роль при внедрении лазерного метода.

Суть АВЛИС-метода состоит в селективной лазерной фотоионизации атомов целевого изотопа с последующим выделением образованных фотоионов из потока атомов с использованием электростатических полей. Способность лазерного излучения производить фотоионы определяет сечение фотоионизации  $\sigma$ :

$$\frac{dN_i}{dt} = N_a \sigma I, \quad (1)$$

где  $N_i$  и  $N_a$  – числа фотоионов и атомов на пути распространения лазерного пучка с площадью сечения  $1\text{ см}^2$ ;  $I$  (в  $\text{см}^{-2} \cdot \text{с}^{-1}$ ) – плотность потока квантов лазерного излучения.

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 11 августа 2017 г., после доработки – 6 октября 2017 г.

Считая, в первом приближении, что процесс фотоионизации протекает с одинаковой скоростью в течение импульса длительностью  $\tau$  (в секундах), получаем, что к концу импульса число фотоионов

$$N_i \approx N_a \sigma I \tau. \quad (2)$$

Для эффективного использования испаренного вещества необходимо, чтобы число фотоионов составляло значительную часть от числа атомов, т. е. чтобы

$$I \approx 1/(\sigma \tau). \quad (3)$$

С точки зрения эффективности применения лазерного излучения важно, какая доля излучения была использована для фотоионизации. Эта доля определяется выражением

$$N_i/(I\tau) \approx N_a \sigma \quad (4)$$

и зависит, кроме сечения, от числа атомов на пути распространения лазерного пучка. Если это число невелико, то расходуется лишь малая часть лазерного излучения. Эффективность его применения может быть увеличена путем увеличения числа атомов, в результате чего возрастет коэффициент поглощения лазерного излучения и часть атомов окажется в условиях пониженной плотности потока квантов, что приведет к нарушению условия (3). Компромиссом можно условно считать заметный, но небольшой коэффициент поглощения, скажем 0.1:

$$N_a \sigma \approx 0.1. \quad (5)$$

Число атомов на пути распространения лазерного пучка можно представить в виде произведения концентрации атомов целевого изотопа  $n$  и длины испарителя  $L$ . Тогда

$$L \approx 0.1/(n\sigma). \quad (6)$$

Из формул (3) и (6) видно, что с уменьшением сечения фотоионизации  $\sigma$  масштаб установки (мощность лазеров и длина испарителя) и, следовательно, ее стоимость возрастают. Например, в схемах фотоионизации лютеция [3] и никеля [4] сечения фотоионизации составляют  $\sim 10^{-15}$  см<sup>2</sup>, и при использовании традиционной для АВЛИС лазерной системы (лазеры на красителе (ЛК) с накачкой излучением лазеров на парах меди (ЛПМ)) вполне эффективной оказывается лабораторная установка со средней мощностью лазерной системы в несколько ватт и длиной испарителя  $\sim 1$  м. Однако в схеме фотоионизации неодима [5] (сечение фотоионизации составляет  $\sim 10^{-17}$  см<sup>2</sup>) необходимая эффективность достигается лишь на установке промышленного масштаба со средней мощностью в несколько сотен ватт и длиной испарителя в несколько десятков метров. Это хорошо соответствует задаче получения нескольких сотен килограммов обогащенного неодима, необходимых для поиска массы нейтрино [6]. Строительство такой крупной установки требует значительных затрат, что является серьезным препятствием на пути внедрения АВЛИС-метода. Следует упомянуть, что именно высокие риски при внедрении новой технологии привели к свертыванию программы внедрения АВЛИС-метода в производство обогащенного урана в США на рубеже XX и XXI веков [7].

Риски при внедрении АВЛИС-технологии можно существенно снизить за счет ее поэтапного развития – путем создания эффективной установки лабораторного масштаба. Для достижения эффективного использования лазерного излучения и испаренного вещества на установке лабораторного масштаба требуется новая схема фотоионизации неодима с сечением фотоионизации  $\sim 10^{-15}$  см<sup>2</sup>. Разработка такой схемы позволит создать единый технологический лазерный комплекс для получения радионуклидов <sup>177</sup>Lu и <sup>63</sup>Ni, а также изотопа <sup>150</sup>Nd.

## 2. Разработка схемы фотоионизации атомов неодима

Опыт поиска трехступенчатых схем фотоионизации [5] показывает, что в спектре NdI не удается найти нечетные автоионизационные (АИ) состояния с большими сечениями фотоионизации, за исключением уровня с энергией  $E = 50474$  см<sup>-1</sup> [8]. Однако в трехступенчатой схеме с использованием этого состояния, предложенной в работе [8], изотопический сдвиг частоты на первом переходе мал, что не позволяет получить достаточную селективность [5]. Поэтому был необходим поиск новой схемы фотоионизации, который проводился в двух направлениях.

Первое направление заключается в попытке найти АИ состояние с большим сечением фотоионизации среди четных состояний. Перевести атомы неодима из четного основного состояния в четное АИ состояние с энергией выше порога ионизации  $44562$  см<sup>-1</sup> можно с использованием двух дипольных переходов. При этом частота одного перехода должна находиться в УФ диапазоне спектра, а частота другого – в видимом диапазоне.

Второе направление заключается в попытке использования большого сечения фотоионизации через известный уровень с энергией  $50474$  см<sup>-1</sup>. Для реализации этой возможности необходимо было найти комбинацию переходов, которые, с одной стороны, имели бы значительные изотопические сдвиги частот ( $\sim 1$  ГГц) и позволяли бы получать высокую селективность, а с другой стороны,

могли бы переводить атомы неодима в АИ состояние с энергией  $50474$  см<sup>-1</sup>.

Структура энергетических уровней атома неодима является одной из наиболее сложных среди энергетических структур лантаноидов, что объясняется частичным заполнением f-оболочки, содержащей в основном состоянии четыре электрона, близких по энергии к d-электронам. Несмотря на большой массив данных по энергетическим уровням NdI [9, 10], спектр неодима остается недостаточно полно изученным, с большим количеством неклассифицированных уровней и переходов. Особенно мало сведений о высоколежащих состояниях с энергиями выше  $31000$  см<sup>-1</sup>. Последние найденные нами работы по спектроскопии NdI опубликованы почти 15 лет назад [11, 12].

При разработке двухступенчатой схемы перехода в четное АИ состояние следует учитывать, что лазерное излучение в УФ области получается за счет удвоения частоты в нелинейном кристалле, вследствие чего существенно ограничивается его мощность. В связи с этим мы остановились на рассмотрении схем с УФ переходом из основного состояния, поскольку сечения поглощения для первых переходов, как правило, значительно больше сечения ионизации. Кроме того, результаты исследования изотопических сдвигов [13] позволяют предположить, что среди таких переходов возможно наличие переходов с большими изотопическими сдвигами частоты.

В табл.1 представлены параметры линий наиболее сильных переходов из основного состояния NdI, обнаруженных нами в диапазоне длин волн  $3028 - 3233$  Å, а также изотопические сдвиги между частотами переходов в <sup>142</sup>Nd и <sup>144</sup>Nd. Для переходов с наибольшими изотопическими сдвигами измерены также сдвиги между частотами переходов в <sup>148</sup>Nd и <sup>150</sup>Nd. Несмотря на то что по абсолютной величине изотопический сдвиг частот найденных

Табл.1. Изотопические сдвиги частот  $\Delta\nu_{142-144}$  и  $\Delta\nu_{148-150}$  наиболее сильных переходов из основного состояния NdI, обнаруженных в диапазоне длин волн  $3028 - 3233$  Å, отношения изотопических сдвигов к доплеровским ширинам линий при температуре испарения неодима  $1900$  К, а также аналогичные характеристики трех переходов в видимой области спектра (ошибка измерений  $\Delta\nu$  составила  $\pm 30$  МГц).

Длина волны линии перехода в вакууме (Å)	Энергия перехода (см <sup>-1</sup> )	Изотопический сдвиг частот перехода $\Delta\nu_{142-144}$ ( $\Delta\nu_{148-150}$ ) (ГГц)	Отношение $ \Delta\nu_{148-150} $ к доплеровской ширине линии
3027.736	33027.98	-1.40 (-1.75)	0.69
3073.764	32533.40	-1.26 (-1.57)	0.63
3087.192	32391.90	-1.04	–
3094.786	32312.42	-0.95	–
3188.381	31363.88	-1.03 (-1.39)	0.58
3191.617	31332.09	-0.55	–
3191.992	31328.40	-0.94	–
3194.169	31307.04	-0.26	–
3195.333	31295.64	-0.34	–
3208.585	31166.39	-0.57	–
3214.209	31111.86	-0.90	–
3217.835	31076.80	-0.86	–
3223.330	31023.81	-1.11 (-1.30)	0.55
5889.506	16979.352	-0.224 (-0.106) [14]	0.08
5967.641	16757.039	-0.872 (-1.127) [14]	0.88
6289.743	15898.902	-0.674 (-0.802) [14]	0.66

Табл.2. Энергии четных АИ уровней Nd I и длины волн (в вакууме) линий соответствующих АИ переходов в <sup>142</sup>Nd с уровня с энергией 33027.984 см<sup>-1</sup>, а также отношение *K* тока фотоионизации через АИ состояние к току фотоионизации в континуум при средней интенсивности лазерного излучения 2.5 Вт/см<sup>2</sup>.

Длина волны линии АИ перехода (Å)	Энергия АИ состояния (см <sup>-1</sup> )	<i>K</i>
6004.21	49682.96	4
5981.70	49745.65	4
5964.91	49792.69	10
5964.16	49794.81	6
5953.07	49826.03	2
5952.47	49827.73	3
5946.61	49844.30	4
5930.42	49890.20	7
5929.84	49891.84	12
5929.29	49893.40	14
5908.40	49953.03	5
5871.79	50058.57	4
5765.57	50372.32	4

переходов в УФ области больше, чем на переходе с  $\lambda_1 = 5967.64 \text{ \AA}$  в схеме фотоионизации [5], ожидать увеличения селективности фотоионизации не следует, поскольку отношения изотопических сдвигов к доплеровским ширинам у этих переходов заметно меньше.

Для перехода с  $\lambda_1 = 3027.736 \text{ \AA}$  с наибольшим измеренным изотопическим сдвигом был проведен поиск переходов в АИ состояния с энергиями  $E = 49667-50573 \text{ см}^{-1}$ . Характеристики обнаруженных переходов приведены в табл.2.

В схеме фотоионизации с  $\lambda_1 = 3027.736 \text{ \AA}$  и  $\lambda_2 = 5929.843 \text{ \AA}$  исследованы зависимости фотоионного тока от средней интенсивности лазерного излучения на частотах первого и второго переходов, представленные на рис.1 и 2. Видно, что для насыщения перехода в АИ состояние требуется лазерное излучение со средней интенсивностью 80 Вт/см<sup>2</sup>, что соответствует сечению фотоионизации менее  $10^{-16} \text{ см}^2$ . Результаты показывают, что, хотя на первом этапе исследований схема фотоионизации с большим сечением не найдена, в целом поиск среди двухступенчатых схем следует считать перспективным и работа в этом направлении будет продолжена.

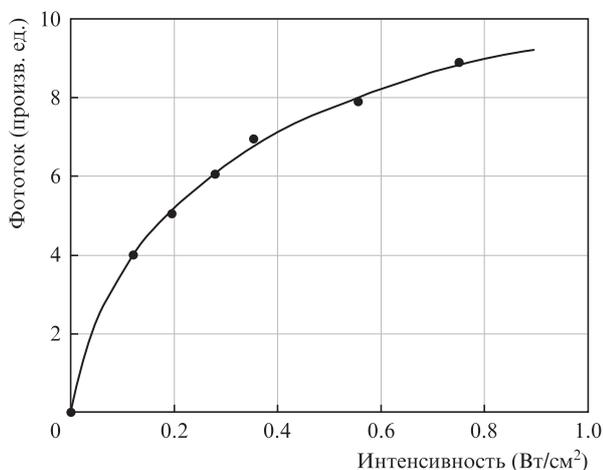


Рис.1. Зависимость фотоионного тока от средней интенсивности возбуждающего излучения ( $\lambda_1 = 3027.736 \text{ \AA}$ ) при интенсивности ионизирующего излучения 3 Вт/см<sup>2</sup>.

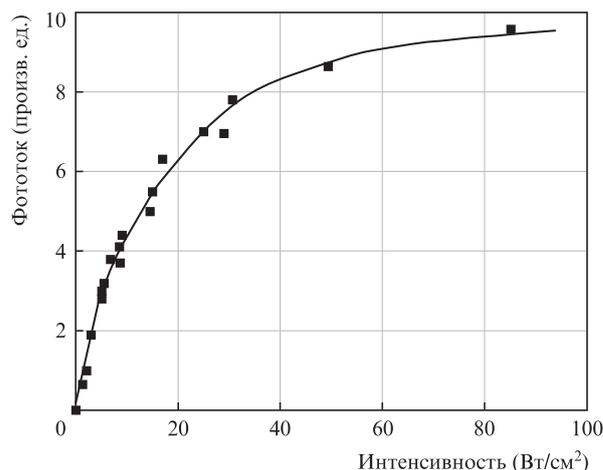


Рис.2. Зависимость фотоионного тока от средней интенсивности ионизирующего излучения ( $\lambda_2 = 5929.843 \text{ \AA}$ ) при средней интенсивности возбуждающего излучения 0.25 Вт/см<sup>2</sup>.

Второе направление поиска связано с разработкой трехступенчатой схемы фотоионизации через АИ состояние с энергией  $50474 \text{ см}^{-1}$ , обнаруженное в работе [8], в которой была предложена схема фотоионизации с  $\lambda_1 = 5889.51 \text{ \AA}$  и  $\lambda_2 = \lambda_3 = 5971 \text{ \AA}$  при использовании данного АИ уровня (рис.3). Изотопические сдвиги между частотами переходов с  $\lambda_1 = 5889.51 \text{ \AA}$  в <sup>148</sup>Nd и <sup>150</sup>Nd составляют всего  $-0.11 \text{ ГГц}$  [14] (табл.1), поэтому применять эту схему непосредственно для выделения изотопа <sup>150</sup>Nd из природной смеси с высокой селективностью не удастся. Обращает также на себя внимание то, что полный электронный момент *J* первого возбужденного уровня с энергией  $E = 16979.35 \text{ см}^{-1}$  равен 3. В соответствии с правилом отбора для дипольных переходов  $\Delta J = 0, \pm 1$ , следовательно число *J* второго возбужденного уровня с  $E = 33276.1 \text{ см}^{-1}$  должно быть равно 2, 3 или 4. Попытка найти переход в состояние с  $E = 33276 \text{ см}^{-1}$  из первого возбужденного состояния с  $E = 16757.039 \text{ см}^{-1}$  и  $J = 5$ , которое соответствует первому переходу с  $\lambda_1 = 5967.641 \text{ \AA}$  и большим изото-

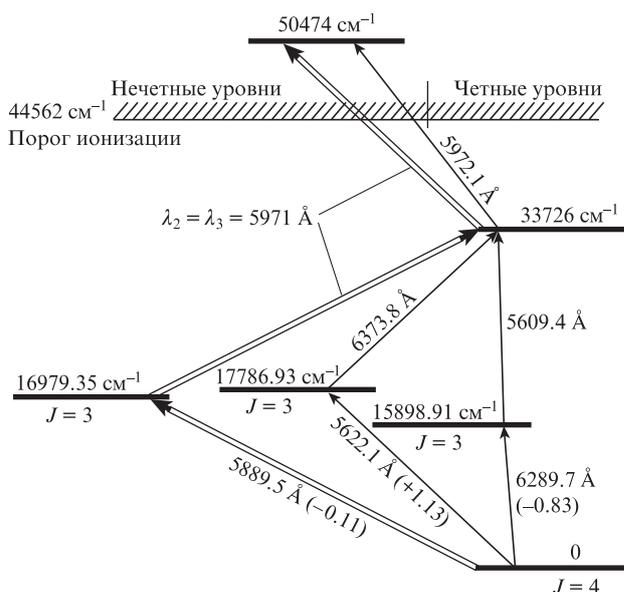


Рис.3. Схемы фотоионизации Nd I. Двойными линиями выделена схема фотоионизации, предложенная в работе [8]. В скобках указан изотопический сдвиг между частотами (в ГГц) переходов в <sup>148</sup>Nd и <sup>150</sup>Nd.

Табл.3. Изотопические сдвиги частот переходов первой ступени (в МГц).

Длина волны линии перехода (Å)	$\Delta\nu_{142-144}$	$\Delta\nu_{144-146}$	$\Delta\nu_{146-148}$	$\Delta\nu_{148-150}$	Литература
6289.741	-674	-638	-670	-803	[14]
5622.105	+600 (30)	+615 (30)	+702 (40)	+1131 (40)	Настоящая работа

пическим сдвигом, не увенчалась успехом. Поэтому квантовое число  $J$  второго возбужденного уровня с  $E = 33276.1 \text{ см}^{-1}$  составляет 2 или 3. Отсюда следует, что нужно искать переходы из основного состояния в первое возбужденное состояние с моментом  $J$ , равным 3 или 4.

Среди первых переходов из основного состояния на уровни с  $J = 3$  известны два перехода: с  $\lambda_1 = 5622.105 \text{ Å}$  на уровень с  $E = 17786.93 \text{ см}^{-1}$  и с  $\lambda_1 = 6289.741 \text{ Å}$  на уровень с  $E = 15898.91 \text{ см}^{-1}$ . Изотопические сдвиги частот этих переходов представлены в табл.3. Для обоих верхних уровней были обнаружены переходы на уровень с  $E = 33726.1 \text{ см}^{-1}$ , и, следовательно, фотоионизация может осуществляться с использованием АИ состояния с  $E = 50474 \text{ см}^{-1}$  (рис.3). Наличие схемы фотоионизации, в которой отсутствует совпадение частот (длин волн) второго и третьего переходов, позволило исследовать спектральный контур линии поглощения на АИ переходе между уровнями с  $E = 33726.1 \text{ см}^{-1}$  и  $50474 \text{ см}^{-1}$  (рис.4). Из рис.4 видно, что спектральный контур имеет значительную ширину и весьма нетипичную структуру.

Были исследованы также зависимости фотоионного тока от интенсивности лазерного излучения на каждом переходе, и результаты этих исследований для первых двух ступеней рассматриваемых схем сведены в табл.4.

Зависимость фотоионного тока от интенсивности лазерного излучения третьей ступени, полученная при настройке длины волны излучения третьей ступени на пик с  $\lambda = 5972.1 \text{ Å}$ , представлена на рис.5. Для насыщения перехода требуется средняя интенсивность  $6 \text{ Вт/см}^2$ , что соответствует сечению фотоионизации  $(5 \pm 1) \times 10^{-16} \text{ см}^2$ . Схема фотоионизации с  $\lambda_1 = 6289.7 \text{ Å}$ ,  $\lambda_2 = 5609.4 \text{ Å}$  и  $\lambda_3 = 5972.1 \text{ Å}$  отвечает поставленной задаче, поскольку сече-

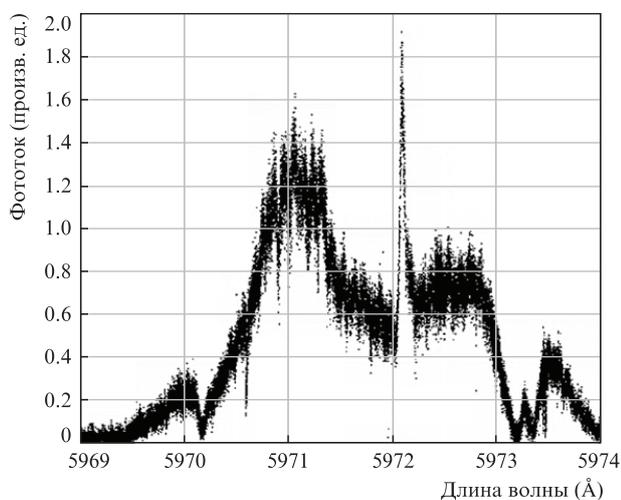


Рис.4. Спектральный контур линии АИ перехода между уровнями с  $E = 33726 \text{ см}^{-1}$  и  $50474 \text{ см}^{-1}$  (ширина пика на  $\lambda = 5972.1 \text{ Å}$  (FWHM) равна 4.7 ГГц). Сканирование длины волны проводилось при средней интенсивности излучения  $0.12 \text{ Вт/см}^2$ .

Табл.4. Интенсивности насыщения переходов первых двух ступеней возбуждения в схемах фотоионизации Nd I.

Ступень	Длина волны линии перехода (Å)	Средняя интенсивность насыщения (Вт/см <sup>2</sup> )
Первая	6289.74	0.06
Вторая	5609.40	0.06
Первая	5622.10	< 0.015
Вторая	6273.84	4

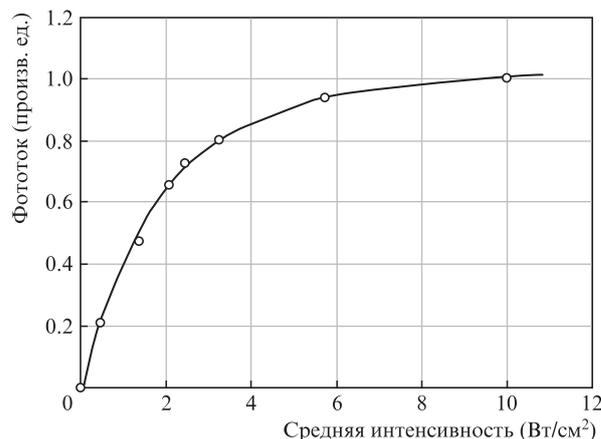


Рис.5. Зависимость фотоионного тока от средней интенсивности лазерного излучения третьей ступени в схеме с  $\lambda_1 = 6289.7 \text{ Å}$ ,  $\lambda_2 = 5609.4 \text{ Å}$  и  $\lambda_3 = 5972.1 \text{ Å}$  при средних интенсивностях излучения первой и второй ступеней возбуждения  $0.18$  и  $0.15 \text{ Вт/см}^2$  соответственно.

ние фотоионизации на переходе с  $\lambda_3 = 5972.1 \text{ Å}$  достаточно велико. С другой стороны, изотопический сдвиг частоты первого перехода ( $\Delta\nu_{148-150} = -803 \text{ МГц}$ ) более чем в семь раз превышает изотопический сдвиг частоты ( $-110 \text{ МГц}$ ) первого перехода с  $\lambda_1 = 5889.5 \text{ Å}$  в схеме работы [8] и позволяет достигать требуемой селективности фотоионизации. Таким образом, найденная схема может быть использована для лабораторной установки по получению изотопа  $^{150}\text{Nd}$ . Применение схемы с  $\lambda_1 = 5622.11 \text{ Å}$ ,  $\lambda_2 = 6273.84 \text{ Å}$  и  $\lambda_3 = 5972.1 \text{ Å}$  нецелесообразно из-за высоких затрат на насыщение второй ступени.

### 3. Разработка лазерной системы

Лазерная система технологического АВЛИС-комплекса должна обеспечивать высокоэффективную селективную фотоионизацию радионуклидов  $^{177}\text{Lu}$  и  $^{63}\text{Ni}$  и изотопа  $^{150}\text{Nd}$ . Необходимым условием высокой эффективности фотоионизации является одновременное насыщение каждого перехода соответствующей схемы фотоионизации. В табл.5 представлены длины волн и средние интенсивности лазерного излучения, отвечающие насыщению переходов в разработанных схемах фотоионизации атомов лютетия, никеля и неодима [3, 4].

По уровню световой мощности, спектральным, частотным и пространственным характеристикам система ЛК с накачкой излучением ЛПМ достаточно эффективна для АВЛИС-процесса [15]. Излучение ЛПМ состоит из двух примерно одинаковых по интенсивности компонент с  $\lambda = 5106$  и  $5782 \text{ Å}$ , что обуславливает широкий спектральный диапазон эффективной генерации ЛК. Следует отметить, что в последнее время для накачки ЛК чаще ис-

Табл.5. Длины волн и средние интенсивности лазерного излучения, соответствующие насыщению переходов в схемах фотоионизации атомов неодима, лютеция и никеля.

Ступень	Элемент	Длина волны (Å)	Интенсивность (Вт/см <sup>2</sup> )
Первая	Nd	6289.74	0.06
	Lu	5404.16	0.01
	Ni	3222.58	0.08
Вторая	Nd	5609.40	0.06
	Lu	5350.59	0.01
	Ni	5464.01	0.02
Третья	Nd	5972.1	6
	Lu	6180.06	2
	Ni	5442.16	5

пользуются твердотельные лазеры с диодной накачкой и удвоением частоты в нелинейном кристалле ( $\lambda = 5321 \text{ Å}$ ) [16, 17], которые характеризуются высоким энергетическим КПД и долговечностью. Однако при схожих энергетических и временных характеристиках излучения, данный источник накачки заметно сужает спектральный диапазон эффективной генерации ЛК и, следовательно, ограничивает возможности метода селективной лазерной фотоионизации.

Условия насыщения переходов должны выполняться на всем протяжении зоны облучения в области взаимодействия с атомным паром, поэтому важным вопросом является выбор диаметра лазерного пучка. С уменьшением поперечного размера пучка, с одной стороны, снижаются требования к выходной мощности ЛК, а с другой – увеличивается расходимость излучения и, следовательно, уменьшается длина зоны, в которой можно условно считать интенсивность постоянной.

При диаметре лазерного пучка менее 10 мм возникают трудности со сведением нескольких пучков в один и с совместной транспортировкой их к сепараторному комплексу. Это условие определяет основные энергетические параметры лазерной системы – средняя мощность лазерного излучения третьей ступени должна составлять 2–6 Вт в зависимости от выделяемого изотопа.

Лазерный комплекс состоит из системы перестраиваемых по длине волны импульсных ЛК, накачиваемых излучением системы ЛПМ.

#### 4. Лазер накачки

Система ЛПМ построена на основе саморазогреваемых активных элементов (АЭ) серии «Кристалл» LT-40Cu (ГНПП «Исток») [18] и тиратронных модуляторов по схеме задающий генератор – усилитель.

В генераторе ЛПМ (рис.6) используется двухпроходное усиление суперлюминесценции. Специальная трехлинзовая ахроматическая система 1–3 с диафрагмой 4 служит для пространственной «чистки» излучения и формирования слабо расходящегося пучка с диаметром, примерно равным диаметру канала АЭ (20 мм).

Средняя выходная мощность задающего генератора ЛПМ составляет 2.5–3 Вт (излучение на  $\lambda = 5106$  и  $5782 \text{ Å}$ , частота следования импульсов 10 кГц, длительность импульсов 20–25 нс). Излучение задающего генератора ЛПМ имеет близкий к П-образному профиль распределения интенсивности (однородность лучше 90%), расходимость не более 0.4 мрад, линейную поляризацию и высо-

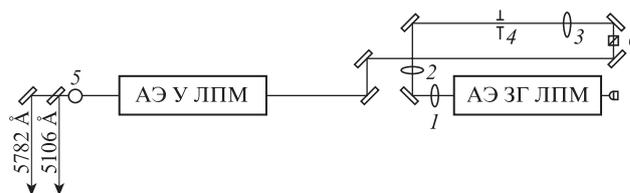


Рис.6. Оптическая схема ЛПМ (задающий генератор (ЗГ) – усилитель (У)):

1–3 – трехлинзовая ахроматическая система; 4 – диафрагма; 5 – дихроичное зеркало; 6 – поляризационный куб.

кую стабильность диаграммы направленности (не более 0.05 мрад/ч). Такие параметры излучения способствуют его дальнейшему успешному усилению в АЭ усилителя ЛПМ, а также эффективной и устойчивой конвертации в излучение ЛК. Мощность на выходе усилителя ЛПМ возрастает до 40–42 Вт без заметного уменьшения пространственных и поляризационных характеристик излучения. Для временного согласования активных элементов ЛПМ используется электронная система [19], обеспечивающая временной разброс запуска не более  $\pm 1$  нс.

Отношение средних мощностей зеленой ( $\lambda = 5106 \text{ Å}$ ) и желтой ( $\lambda = 5782 \text{ Å}$ ) компонент излучения ЛПМ составляет  $\sim 5/4$  (23 Вт/17 Вт). Их пространственное разведение осуществляется дихроичным зеркалом (5, рис.6), после чего два пучка накачки направляются к системе ЛК.

#### 5. Лазеры на красителе

Система ЛК (рис.7) содержит три независимых канала, построенные по схеме задающий генератор – усилитель. Один канал ЛК накачивается желтой компонентой излучения ЛПМ ( $\lambda = 5782 \text{ Å}$ ), а два других – зеленой ( $\lambda = 5106 \text{ Å}$ ). В зависимости от применяемой схемы фотоионизации (табл.5) в каналах третьей ступени используется один или два усилителя.

Задающие генераторы ЛК построены по схеме Литтмана [20] с одним селективирующим элементом – дифракционной решеткой, работающей в режиме скользкого падения, и выводом излучения в нулевой порядок дифракции. Выходная мощность одномодового излучения составляет 150–200 мВт (при мощности излучения накачки 1.5–2 Вт), спектральная ширина линии – 100–130 МГц (FWHM), неселективная фоновая составляющая – не более 0.3%, длительность импульса – 15–18 нс (FWHM). По профилю распределения интенсивности и расходимости пучок излучения близок к гауссову ( $M^2 \approx 1.5$ ); более подробную информацию о задающем генераторе ЛК можно найти в работе [21].

Для ионизации атомов  $^{177}\text{Lu}$ ,  $^{63}\text{Ni}$  и  $^{150}\text{Nd}$  в конкретных схемах (табл.5) используются наиболее эффективные с нашей точки зрения лазерные красители: PM556, PM567, PM597 (накачка с  $\lambda = 5106 \text{ Å}$ ) и SR640, Cresyl Violet (накачка с  $\lambda = 5782 \text{ Å}$ ). Экспериментальные зависимости КПД одномодовой генерации задающего генератора ЛК от длины волны для данных красителей представлены на рис.8.

В усилителях ЛК применяется продольная геометрия накачки [18, 22], которая позволяет получать высокие КПД преобразования излучения накачки и иметь на выходе пучки с достаточно равномерным профилем интенсивности [23]. Эффективность работы усилителей лазеров на выбранных красителях демонстрирует рис.9, где при-

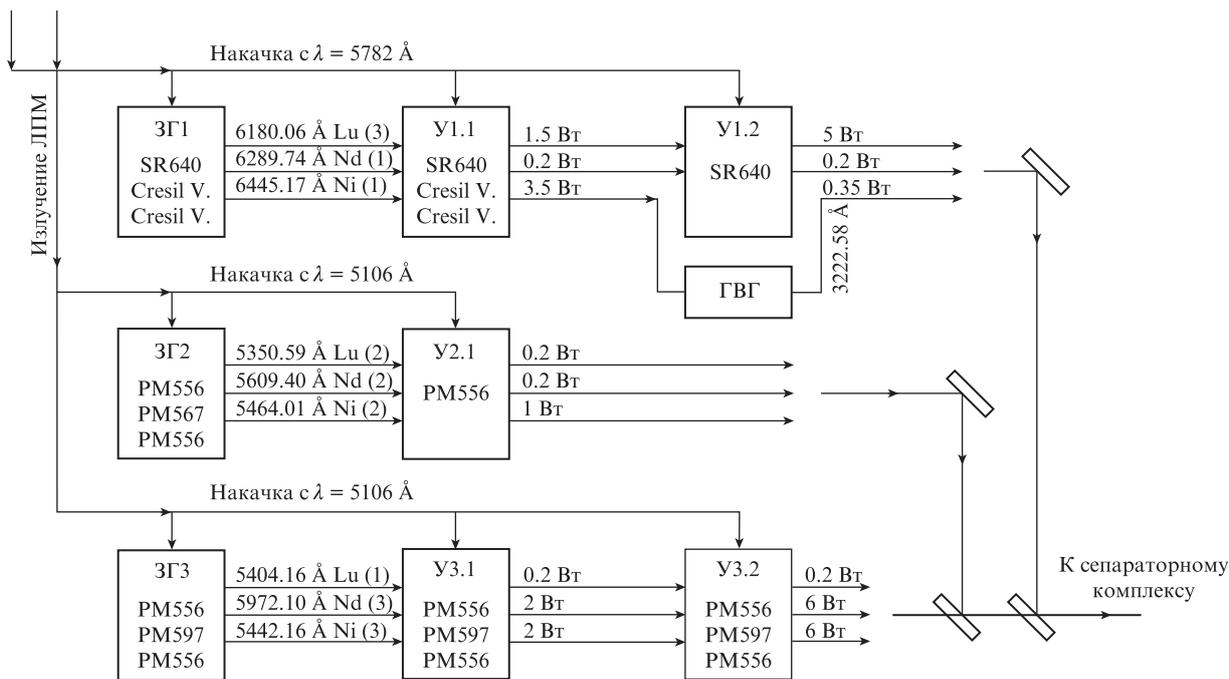


Рис.7. Блок-схема системы ЛК. Рядом с каждым лучом указаны длина волны и средняя выходная мощность, а в скобках дан номер ступени ионизации. Для каждого ЗГ и У приведены лазерные красители, которые используются при ионизации конкретного элемента; ГВГ – генератор второй гармоники.

ведены экспериментальные зависимости КПД преобразования излучения накачки от коэффициента усиления.

Для генерации излучения в УФ диапазоне (первая ступень возбуждения атомов  $^{63}\text{Ni}$ ;  $\lambda_1 = 3222.584 \text{ \AA}$ ) частота излучения ЛК удваивается в нелинейном кристалле (ГВГ, рис.7). Выходная мощность излучения с  $\lambda_1 = 3222.584 \text{ \AA}$  составляет  $\sim 0.3\text{--}0.35 \text{ Вт}$  при КПД генерации второй гармоники  $\sim 12\%\text{--}15\%$  (кристалл  $\beta\text{-ВВО}$  размером  $4 \times 4 \times 5 \text{ мм}$ , углы синхронизма  $\theta = 39^\circ$ ,  $\varphi = 90^\circ$ ).

Мощности излучения во всех каналах системы ЛК и для всех ионизируемых элементов приведены на рис.7. Максимальная суммарная средняя мощность трех пучков излучения ЛК составляет 12 Вт (5 Вт + 1 Вт + 6 Вт), что при мощности излучения накачки 40 Вт соответствует эффективности его преобразования 30%. Известны системы

ЛК с эффективностями 40%–50%, однако такие значения достигаются исключительно за счет эффективной работы оконечных усилителей ЛК при значительно более высоких мощностях излучения накачки [15]. Высокая эффективность разработанной системы стала возможна благодаря использованию продольной геометрии накачки в усилителях ЛК, конструкции задающих генераторов ЛК и ЛППМ, а также результатам экспериментального поиска наиболее эффективных ЛК.

На выходе усилителей пучки излучения ЛК телескопировались до поперечного диаметра 10–12 мм, их сведение в один пучок проводилось на полупрозрачных и/или дихроичных зеркалах. Контроль длины волны излучения каждого ЛК осуществлялся с помощью прецизионных  $\lambda$ -метров LM007 (Laser 2000, GmbH), обеспечивающих абсолютную точность измерений длины волны, равную  $\sim 0.0005 \text{ \AA}$ . Данные приборы использовались также в ка-

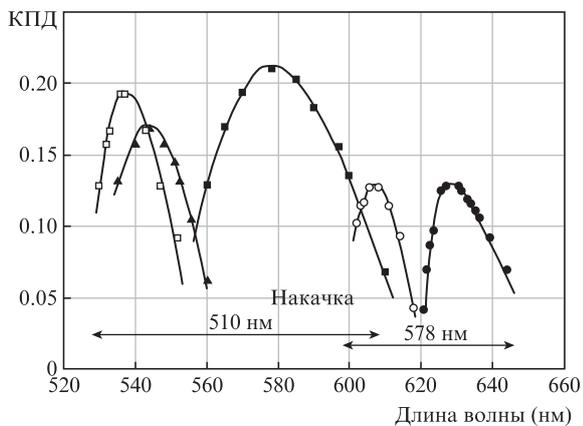


Рис.8. Зависимости КПД генерации от длины волны одномодового излучения задающего генератора ЛК (с накачкой излучением ЛППМ) для лазерных красителей PM556 (растворитель этанол – дистиллированная вода (10/1)) (□), PM567 в этаноле (▲), PM597 в n-гептане (■), SR640 (этанол – дистиллированная вода (2/1)) (○) и Cresyl Violet в этаноле (●). Все красители производства фирмы Exciton (США).

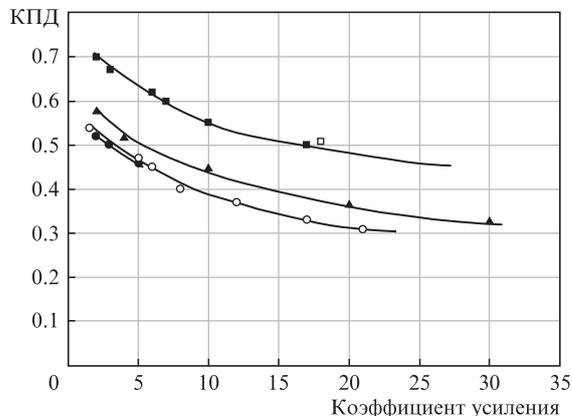


Рис.9. Зависимости КПД усилителей ЛК (с продольной накачкой излучением ЛППМ) от коэффициента усиления для красителей: PM556 ( $\lambda = 540 \text{ нм}$ ) (□), PM567 ( $\lambda = 550 \text{ нм}$ ) (▲), PM597 ( $\lambda = 580 \text{ нм}$ ) (■), SR640 ( $\lambda = 606 \text{ нм}$ ) (○), Cresyl Violet ( $\lambda = 635 \text{ нм}$ ) (●). В скобках указаны длины волн, на которых проводились измерения.

честве стабилизированного эталона при переводе любого ЛК в режим активной стабилизации длины волны в ходе ионизации. Удержание частоты генерации ЛК осуществлялось автоматически управлением длиной резонатора задающего генератора ЛК, отклонение центра линии генерации от заданного значения в режиме долговременной стабилизации не превышало  $\pm 40$  МГц.

Для возможности быстрого перевода лазерной системы в спектральный диапазон одной из трех схем ионизации число систем прокачки раствора красителя было увеличено до 10 (по числу рабочих красителей для генераторов и усилителей ЛК). В этом случае процедура смены красителя в любом элементе системы ЛК состоит в пересоединении входных и выходных шлангов лазерных кювет от одной прокачной системы к другой (без проведения слива-залива раствора, без тщательной промывки системы, замены фильтрующих элементов и т.д.). Практика показала, что небольшое ( $\sim 1$  см<sup>3</sup>) остаточное количество раствора красителя на внутренних стенках кювет и шлангов не влияет на генерационные характеристики нового раствора, объем которого составляет  $\sim 10$  л.

В оптической части перевод лазерной системы на другую схему требует замены дихроичных зеркал сведения пучков и перестановки узла поворотного зеркала резонатора задающего генератора в соответствующее спектру генерации угловое положение. Большинство оптических элементов системы (зеркала, делительные пластины, окна кювет и т.д.) имеют широкополосные (530–600 нм, 600–650 нм) диэлектрические (отражающие и просветляющие) покрытия и не требуют смены. Перечисленные выше технические решения позволяли перестраивать лазерную систему на работу с конкретным элементом в течение одного рабочего дня.

## 6. Заключение

В практически важных случаях разделения изотопов лютеция, никеля и неодима найдены схемы фотоионизации, имеющие схожие изотопические сдвиги и эффективные сечения фотоионизации. Это позволяет рассматривать возможность создания лазерного комплекса для производства радиоинклидов <sup>177</sup>Lu и <sup>63</sup>Ni и изотопа <sup>150</sup>Nd в лабораторном масштабе с компактной и мобильной лазерной системой на базе ЛК, накачиваемых излучением ЛПМ.

Разработанная лазерная система дала возможность впервые осуществить преобразование излучения накачки ЛПМ в «качественное» излучение трех ЛК (одномодовое, стабилизированное по длине волны в диапазоне 535–645 нм, с расходимостью, близкой к дифракционной) с эффективностью 30% при малой средней мощности излучения накачки (20–40 Вт).

Лазер накачки построен на базе только двух АЭ серии «Кристалл» ЛТ-40Сu, что позволяет обеспечивать эксплуатацию установки в рамках грантового финансирования.

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

1. Кудрин Л.П., Новиков В.М., Блинкин В.Л. *Методы разделения изотопов, основанные на селективном фотовозбуждении* (Отчет ИАЭ-1986); *Брошюра РНЦ «Курчатовский институт»* (М., 2002, с.39).
2. Летохов В.С. *О возможности разделения изотопов методами резонансной фотоионизации атомов и фотодиссоциации молекул лазерным излучением* (Отчет ФИАИ, 1969); *Препринт ИСАН СССР № 1* (М., 1979, с. 1).
3. D'yachkov A.B., Firsov V.A., Gorkunov A.A., Labozin A.V., Mironov S.M., Panchenko V.Y., Semenov A.N., Shatalova G.G., Tsvetkov G.O. *Appl. Phys. B*, **121**, 425 (2015).
4. Цветков Г.О., Дьячков А.Б., Горкунов А.А., Лабозин А.В., Миронов С.М., Фирсов В.А., Панченко В.Я. *Квантовая электроника*, **47** (1), 48 (2017) [*Quantum Electron.*, **47** (1), 48 (2017)].
5. 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)].
6. Balysh A.Y., Labozin V.P., Semenov S.V. *Nucl. Phys. B: Proc. Suppl.*, **237-238**, 7 (2013).
7. <https://web.archive.org/web/20080821193614/http://www.usec.com/NewsRoom/NewsReleases/USECInc/1999/1999-06-09-USEC-Inc-Suspends-AVLIS.htm>.
8. Зюзиков А.А., Мишин В.И., Федосеев В.Н. *Оптика и спектроскопия*, **64** (3), 480 (1988).
9. Martin W.C., Zalubas R., Hagan L. *Atomic Energy Levels. The Rare-Earths Elements* (Washington: NBS (US), 1978, p. 124).
10. King A.S. *Astrophys. J.*, **78** (1), 9 (1933).
11. Biémont E., Quinet P., Svanberg S., Xu H.L. *J. Phys. B: At. Mol. Opt. Phys.*, **37**, 1381 (2004).
12. Смирнов Ю.М. *TBT*, **41** (2), 211 (2003).
13. Ahmad S.A., Saskena G.D. *Spectrochimica Acta, Part B*, **35**, 81 (1980).
14. Van Leeuwen K.A.H., Eliel E.R., Post V.H., Hogervorst W. *Z. Phys. A: At. Nucl.*, **301**, 95 (1981).
15. Bass I.L., Bonanno R.E., Hackel R.P., et al. *Appl. Opt.*, **31**, 6993 (1992).
16. Hyunmin Park, Duck-Hee Kwon, Yongho Cha, Sungmo Nam, Tak-Soo Kim, Jaemin Han, Yongjoo Rhee, Do-Young Jeong, Cheol-Jung Kim. *J. Korean Phys. Soc.*, **49** (1), 382 (2006).
17. Mishra G.K. *RRCAT Newsletter*, **29** (2), 15 (2016).
18. Лябин Н.А., Чурсин А.Д., Угольников С.А., Королева М.Е., Казарян М.А. *Квантовая электроника*, **31** (3), 191 (2001) [*Quantum Electron.*, **31** (3), 191 (2001)].
19. Фирсов В.А., Сулов В.И., Белоусов А.Б. и др. *Сб. докл. VI Всерос. (международ.) научной конф. «Физико-химические процессы при селекции атомов и молекул»* (Звенигород, ЦНИИАтоминформ, 2002, с.235–239).
20. Littman M.G. *Appl. Opt.*, **23**, 4465 (1984).
21. Grigoriev I., Diachkov A., Kuznetsov V., Labosin V., Firsov V. *Proc. SPIE Int. Soc. Opt. Eng.*, **5121**, 411 (2003).
22. Дьячков А.Б., Лабозин В.П. *Сб. докл. VI Всерос. (международ.) научной конф. «Физико-химические процессы при селекции атомов и молекул»* (Звенигород, ЦНИИАтоминформ, 2001, с. 132).
23. Григорьев И.С., Дьячков А.Б., Лабозин В.П. и др. *Квантовая электроника*, **34** (5), 447 (2004) [*Quantum Electron.*, **34** (5), 447 (2004)].