

ПРИБОРЫ И МЕТОДЫ ИССЛЕДОВАНИЙ

Изотопически селективная фотоионизация для получения медицинского радиоизотопа ^{177}Lu

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

Представлены результаты по изотопически селективной фотоионизации лютеция с использованием перестраиваемых лазеров на красителях, накачиваемых лазерами на парах меди, применительно к задаче получения радионуклида ^{177}Lu для медицинского применения.

Ключевые слова: селективная фотоионизация, лазерное разделение изотопов, ^{177}Lu

PACS numbers: 28.60.+s, 42.62.-b, 87.56.-v

DOI: <https://doi.org/10.3367/UFNr.2021.12.039140>

Содержание

1. Введение (554).
 2. Экспериментальная установка и методы измерений (555).
 3. Оптическая схема фотоионизации (556).
 4. Время жизни уровней (560).
 5. Сечения переходов (562).
 6. Степень извлечения целевого изотопа при фотоионизации (563).
 7. Селективность фотоионизации (565).
 8. Нарботка весовых количеств ^{176}Lu (567).
 9. Заключение (569).
- Список литературы (569).

1. Введение

Лютеций — это последний элемент группы лантаноидов. Природный лютеций состоит из смеси стабильного ^{175}Lu с распространённостью 97,4 % и слабо β -радиоактивного ^{176}Lu (период полураспада $T_{1/2} = 3,6 \times 10^{10}$ лет) с природной концентрацией 2,6 %. Остальные изотопы лютеция (свыше 60, включая изомеры [1]) получены искусственно и являются радиоактивными с временами жизни от нескольких миллисекунд до нескольких лет. С практической точки зрения среди них выделяется радиоактивный ^{177}Lu как наиболее востребованный медицинский радиофармацевтический препарат. Благодаря своим ядерно-физическим свойствам: периоду полураспада 6,7 сут, невысокой средней энергии β -электронов (~ 133 кэВ) и радиусу воздействия на биологическую ткань менее 2 мм — изотоп считается наиболее подходя-

щим для лечения небольших опухолей и метастаз как оказывающий минимальное воздействие на здоровые органы. Сопутствующее мягкое гамма-излучение с энергией 113 и 208 кэВ позволяет осуществлять диагностику (визуализацию), проводить дозиметрический анализ и оптимизировать процесс лечения в каждом конкретном случае, реализуя принципы персонализированной медицины.

В настоящее время существуют два основных метода получения изотопа ^{177}Lu , основанные на облучении изотопно-обогащённого вещества потоком нейтронов в атомном реакторе. При получении ^{177}Lu "непрямым" методом (indirect route) применяется мишень из высокообогащённого ^{176}Yb (природная концентрация 12,6 %), который при захвате нейтрона переходит в ^{177}Yb с дальнейшим распадом с образованием ^{177}Lu . Выделение ^{177}Lu из иттербиевого носителя осуществляется химическими методами. Концентрация радионуклида, выделяемого этим методом, достигает теоретического предела ~ 100 % [2, 3], однако из-за малого сечения захвата нейтронов ядром ^{176}Yb (2,5 бн) требуется использование больших нейтронных потоков. Кроме того, за один сеанс облучения лишь небольшая доля обогащённого ^{176}Yb ($\sim 10^{-4}$) переходит в ^{177}Lu , причём повторное использование высокообогащённого иттербия затруднено, что существенно увеличивает стоимость конечного продукта. Во втором методе (direct route) используется большое сечение захвата нейтрона ядром ^{176}Lu — примерно 2065 бн. В умеренных нейтронных потоках ($\sim 10^{14}$ см $^{-2}$ с $^{-1}$) при применении высокообогащённого ^{176}Lu концентрация ^{177}Lu достигает 20 %, при интенсивном нейтронном потоке ($\sim 2 \times 10^{15}$ см $^{-2}$ с $^{-1}$) достигим уровень 60 % [4, 5]. Характерной особенностью этого метода, отличающей его от предыдущего, является наличие в облучённом продукте долгоживущего метастабильного ядерного изомера $^{177\text{m}}\text{Lu}$ с периодом полураспада 160 сут. Такое различие времён жизни изомерного возбуждённого состояния и основного обусловлено за-
плетом на дипольные переходы γ -квантов из-за большой

А.Б. Дьячков, А.А. Горкунов, А.В. Лабозин, С.М. Миронов,
В.А. Фирсов, Г.О. Цветков (*), В.Я. Панченко
Национальный исследовательский центр "Курчатовский институт",
пл. Академика Курчатова 1, 123182 Москва, Российская Федерация
E-mail: (*) Tsvetkov_GO@nrcki.ru

Статья поступила 2 ноября 2021 г.,
после доработки 17 декабря 2021 г.

разницы в ядерном спине: $I = 23/2$ у $^{177\text{m}}\text{Lu}$ и $I = 7/2$ у ^{177}Lu . Недостатками прямого метода являются ограниченная концентрация ^{177}Lu и присутствие изомера $^{177\text{m}}\text{Lu}$, которые приводят к образованию в процессе лечения пациентов долгоживущих радиоактивных отходов, что представляет определённые проблемы при их хранении и утилизации. Однако в последнее время возник интерес и к экстракции самого изомера. Интерес связан с возможностью создания генератора ^{177}Lu , основанного на ядерном переходе метастабильного $^{177\text{m}}\text{Lu}$ в основное состояние [6]. Ввиду большого времени жизни изомера такой генератор мог бы длительное время снабжать лечебное учреждение радиоизотопом ^{177}Lu в максимальной степени независимо от облучения в реакторе.

В наших работах мы рассматривали альтернативный метод получения ^{177}Lu посредством разделения изотопов, основанный на использовании лазерной изотопически селективной фотоионизации атомов. Особенностью метода является возможность разделения радиоактивных изотопов, поскольку основная часть установки — лазерная система — оказывается вне радиоактивного воздействия. Теоретические и экспериментальные основы метода, известные уже свыше 50 лет, изложены в многочисленных публикациях [7–11]. Лазерная фотоионизация использовалась нами для экстракции изотопа ^{176}Lu из природного лютеция с целью дальнейшего облучения и получения ^{177}Lu прямым методом [12]. В работе [13] нами был предложен способ получения ^{177}Lu , основанный на лазерном выделении ^{177}Lu из облучённого нейтронами природного металлического лютеция. В результате облучения исходный материал становится смесью изотопов ^{175}Lu , ^{176}Lu , ^{177}Lu и $^{177\text{m}}\text{Lu}$. В зависимости от интенсивности и длительности нейтронного облучения концентрация ^{177}Lu варьируется в пределах 10^{-5} – 10^{-3} . Из них приблизительно 10^{-3} атомов являются долгоживущими изомерами [14]. Извлечь столь малые количества радиоактивного лютеция предлагается с помощью селективной лазерной фотоионизации. Образец помещается в вакуум и при высокой температуре испаряется, образуя пучок атомов, который проходит зону, заполненную лазерным излучением. Благодаря изотопической уникальности спектров оптических переходов излучение позволяет селективно ионизовать изотоп ^{177}Lu или изомер $^{177\text{m}}\text{Lu}$, с тем чтобы в дальнейшем электростатически отделить фотоионы из потока нейтральных атомов, минуя стадию химической очистки от остальных изотопов лютеция. Селективность фотоионизации ^{177}Lu по отношению к $^{177\text{m}}\text{Lu}$ позволит очистить радионуклид от долгоживущего изомера и таким образом сочетать достоинства большого сечения активации "прямого" метода получения радионуклида ^{177}Lu из ^{176}Lu и низкой концентрации изомера, характерной для "непрямого" метода получения ^{177}Lu из ^{176}Yb .

Следует отметить три известные нам работы, в которых предлагаются лазерные технологии для получения радиоизотопа ^{177}Lu . Так, селективная лазерная фотоионизация была использована на стадии обогащения природного иттербия изотопом ^{176}Yb для непрямого способа получения ^{177}Lu [5]. Авторам [5] удалось довести концентрацию иттербия более чем до 97 % с производительностью 27 мг ч⁻¹. Отработке технологии обогащения посвящена также статья [15] по лазерному разделению изотопов иттербия в атомном паре. Продемонстрировано получение из естественной смеси фак-

тически моноизотопа ^{176}Yb с содержанием 99 %. При производстве весовых количеств 20 мг ч⁻¹ концентрация достигала 88 % с подавлением количества изотопа ^{174}Yb от 31,8 % до 5 %, на содержание которого накладываются жёсткие ограничения для облучения в реакторе. Иной вариант использования лазерной технологии для производства фармпрепарата ^{177}Lu развивается международной группой в ЦЕРНе на установке CERN-MEDICIS [16, 17]. Сообщается, что возможны два способа производства радиоизотопа. Первый способ подразумевает использование пучка протонов с энергией 1,4 ГэВ от протонного синхротрона ЦЕРНа. При взаимодействии протонов с мишенью образуются изотопы различных химических элементов, из которых в лазерном поле ионизируются только изотопы лютеция. Изотопы лютеция затем транспортируются в электромагнитный масс-сепаратор, где происходит окончательная экстракция ^{177}Lu . Второй способ предполагает использование в установке образцов, облучённых на ядерных реакторах, медицинских ускорителях, а также образцов из депозитариев ядерных отходов.

В настоящей статье представлен обзор работ, выполненных в Национальном исследовательском центре "Курчатовский институт" (НИЦ КИ) с целью изучения возможностей селективной лазерной фотоионизации для получения ^{177}Lu как медицинского фармпрепарата. Исследования касались не только чисто научных аспектов экстракции изотопа, имеющих самостоятельное значение для атомной спектроскопии, таких как поиск эффективной оптической схемы фотоионизации и её кинетических параметров, изучение сверхтонкой структуры схемы и изотопических сдвигов, но и прикладных факторов разделения изотопов — изотопической селективности, степени извлечения и т.д.

2. Экспериментальная установка и методы измерений

Исследования проводились методом лазерной ионизационной масс-спектрометрии (Laser Resonance Ionization Mass Spectroscopy, LRIMS) [18, 19] на установке, предназначенной для спектроскопических экспериментов с узкими коллимированными атомными пучками с возможностью определения изотопного состава фотоионов, образующихся в ходе лазерной фотоионизации. Установка состоит из вакуумной камеры с системой откачки и изготовленного из тантала испарителя, помещённого внутрь камеры квадрупольного масс-спектрометра. Использовался коммерческий квадрупольный масс-спектрометр MC-7302. Разрешение масс-спектрометра составляло ~200, и при настройке на определённый изотоп вклад в амплитуду сигнала от соседних изотопов не превышал 10^{-4} от амплитуды последних.

Атомы лютеция благодаря системе диафрагм образовывали атомный пучок с полным углом раскрытия 3°. Атомный пучок пересекался лазерным лучом непосредственно в ионизационной камере источника ионов масс-спектрометра (рис. 1). Направления атомного пучка, лазерного излучения и ионно-оптической оси масс-спектрометра были взаимно перпендикулярными. Доплеровское уширение линий в этих условиях составляло ~100 МГц. В камере лазерный луч проходил через диафрагму, которая была установлена непосредственно перед зоной испарения и вырезала наиболее одно-

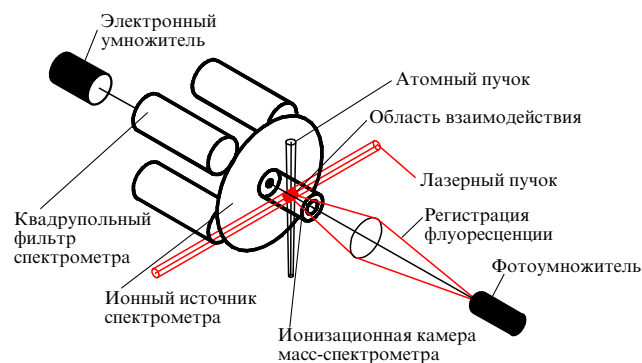


Рис. 1. Общая схема регистрации фотоионного тока и флуоресценции.

родную центральную часть луча. Зона взаимодействия света и пара представляла собой цилиндр длиной и диаметром по 2 мм. Регистрация фотоионов в масс-спектрометре проводилась с помощью вторично-электронного умножителя, а регистрация флуоресценции — с помощью фотоумножителя, расположенного на ионно-оптической оси спектрометра в направлении, обратном потоку фотоионов.

В экспериментах использовался металлический лютеций природного изотопного состава. Для проведения исследований с радиоизотопом ^{177}Lu и изотопом $^{177\text{m}}\text{Lu}$ образцы облучались в потоке нейтронов $(1,5-3) \times 10^{13} \text{ см}^{-2} \text{ с}^{-1}$ реактора ИР-8 в течение 1 и 49 сут соответственно.

Лазерная система включала в себя импульсные лазеры на красителях (ЛК) с генерацией в видимом диапазоне с накачкой излучением лазеров на парах меди (ЛПМ). Система ЛК имела три независимых канала, каждый из которых состоял из задающего генератора (ЗГ) и усилителя. Задающие генераторы работали на одной продольной моде и были построены по схеме Литтмана с дифракционной решёткой, функционирующей в режиме скользящего падения [20]. Два канала ЛК (лазерный краситель Pyromethene-556 в этаноле, диапазон генерации 532–555 нм) накачивались зелёной компонентой ЛПМ (510 нм), один канал ЛК (Sulforhodamine-640 в этаноле: 605–620 нм) накачивался жёлтой компонентой ЛПМ (578 нм). Уровень выходной мощности одномодовой генерации ЗГ составлял 100–200 мВт, спектральная ширина линии генерации 100–150 МГц (FWHM, full width at half maximum), неселективная по частоте фоновая подложка не превышала 0,6 %, длительность импульса 15–20 нс (FWHM), частота повторения импульсов 10 кГц. Увеличение средней мощности ЗГ до уровня в несколько ватт проводилось в усилителях ЛК. Все ЗГ имели возможность сканирования по длине волны генерации посредством изменения напряжения на пьезоприводе поворотного зеркала резонатора. Контроль за длиной волны излучения по каждому ЛК проводился с помощью прецизионных λ -метров LM007 (Laser 2000, GmbH), обеспечивающих абсолютную точность измерений длины волны $\sim 0,0005 \text{ \AA}$. При необходимости λ -метры использовались в качестве стабилизированного эталона для перевода любого ЛК в режим активной стабилизации длины волны. Удержание частоты генерации ЛК осуществлялось автоматически управлением длиной резонатора ЗГ с помощью пьезопривода входного зеркала резонатора. Отклонение цент-

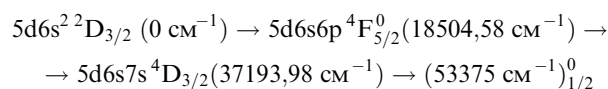
ра линии генерации от заданного значения в режиме долговременной стабилизации не превышало $\pm 40 \text{ МГц}$. Более детальную информацию о системе ЛК можно найти в работе [21].

Лучи ЛК на выходе из усилителей телескопировались до размера $\varnothing = 12 \text{ мм}$. Их пространственное сведение в единый луч проводилось на полупрозрачном и дихроичном зеркалах. Далее трёхцветное излучение направлялось в масс-спектрометрическую камеру. Управление лазерной системой, запись данных и их предварительная обработка осуществлялись в онлайн-режиме [22].

3. Оптическая схема фотоионизации

Порог ионизации атома лютеция равен $43762,60 \text{ см}^{-1}$. Для излучения видимого диапазона это означает, что для преодоления данного порога необходимы три кванта, т.е. схема возбуждения должна быть трёхступенчатой. Электронная конфигурация основного состояния атома $\text{LuI} — 4f^{14}5d6s^2 \text{ } ^2\text{D}_{3/2}$. Поскольку оболочка 4f целиком заполнена, её электроны практически не участвуют в электронных переходах между уровнями и спектр оптических переходов у лютеция не так богат, как у большинства других редкоземельных элементов. Подробная информация об атомных уровнях и спектральных линиях оптических переходов содержится в работах [23–25]. Для системы ЛК с накачкой ЛПМ выбор первого и второго уровней возбуждения был фактически безальтернативным. Наиболее сильные переходы — это переходы с длинами волн 5404 $\text{\AA}$ (первая ступень) и 5350 $\text{\AA}$ (вторая ступень) в состояния $5d6s6p \text{ } ^4\text{F}_{5/2}^0$ и $5d6s7s \text{ } ^4\text{D}_{3/2}$ соответственно, поэтому задача заключалась в том, чтобы на третьей ступени найти эффективное автоионизационное состояние (АИС).

Поиск перехода в АИС с уровня $5d6s7s \text{ } ^4\text{D}_{3/2}$ проводился с использованием трёх ЛК, два из которых настраивались в резонанс с первым и вторым переходами (ЛК1 и ЛК2 соответственно). ЛК третьей ступени (ЛК3) сканировался в спектральном диапазоне перестройки красителя с одновременной регистрацией фотоионного сигнала. При обнаружении пика осуществлялась проверка на связь резонанса со вторым переходом. Если при полном перекрытии ЛК2 фотоионный сигнал исчезал, то обнаруженный резонанс регистрировался как автоионизационный (АИ) переход. Поиск АИС проводился в двух спектральных диапазонах: 5640–5907 $\text{\AA}$ (краситель Pyromethene-597) и 6050–6300 $\text{\AA}$ (Sulforhodamine-640, Cresyl Violet). Результаты представлены в табл. 1. Наиболее ярким оказался автоионизационный переход 6178,77 $\text{\AA}$ (длина волны в воздухе) в состояние с энергией 53375 см^{-1} [12]. Таким образом, оптическая схема фотоионизации LuI , которая была использована в дальнейших исследованиях, выглядит следующим образом:

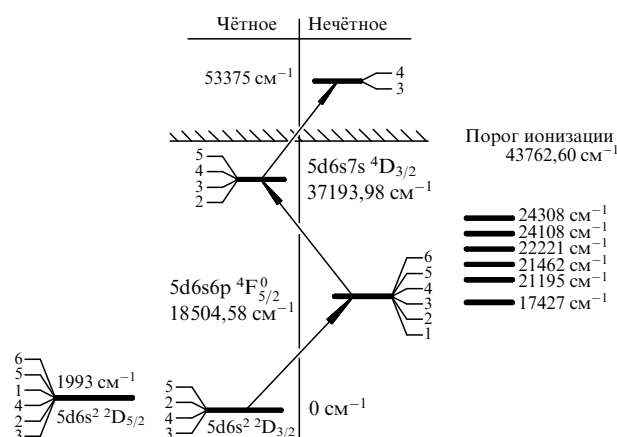


(рис. 2). Отметим, что в последнее время появился ряд работ индийских авторов по фотоионизации изотопов ^{176}Lu и ^{176}Yb . Были предложены новые оптические схемы возбуждения и на основе формализма матрицы плотности выполнены расчёты для поиска оптимальных условий фотоионизации [26–28]. Поиску нечётных автоиони-

Таблица 1. АИ-переходы, зарегистрированные в спектральных диапазонах* 5640–5907 Å и 6050–6300 Å

Длина волны (в воздухе), Å	Фотоионный сигнал, отн. ед.	Длина волны (в воздухе), Å	Фотоионный сигнал, отн. ед.
5640,37	30	5793,88	3
5646,27	18	5799,99	5
5661,17	15	5802,00	6
5724,50	23	5866,83	6
5737,44	350	5884,70	10
5770,79	18	5901,17	15
5777,49	35	6128,60	60
5786,03	30	6145,77	70
5787,10	35	6156,25	80
5793,88	3	6178,77	500

* Относительные единицы величин сигналов фотоионизации для разных диапазонов не совпадают.

**Рис. 2.** Оптическая схема фотоионизации изотопов лютеция ^{175}Lu и ^{177}Lu ($I = 7/2$).

зационных состояний LuI в диапазоне 50650–51650 cm^{-1} посвящена также недавняя работа [29].

Поскольку изотопы ^{175}Lu , ^{176}Lu , ^{177}Lu , $^{177\text{m}}\text{Lu}$ имеют ненулевой спин ядра, все уровни энергии расщеплены в мультиплеты (см. рис. 2). Подуровни в мультиплете определяются полным атомным моментом $F = J + I$, $J + I - 1, \dots, |J - I|$, где J — полный электронный момент атома, I — спин ядра. Спектр сверхтонкой структуры (СТС) составляют переходы между подуровнями мультиплетов с изменением момента $\Delta F = 0, \pm 1$, в результате оптический спектр фотоионизации для каждого изотопа состоит из 30 линий. Разница частот линий, как правило, значительно превосходит спектральную ширину лазеров. Таким образом, при определённой настройке лазеров фотоионизация осуществляется только по одной цепочке линий первой, второй и третьей ступени — каналу фотоионизации. Число возможных каналов с учётом правил отбора достигает 44. Очевидно, что поиск селективных каналов выделения целевого изотопа (по линиям с наибольшим частотным удалением от фоновых изотопов) возможен только на основе детального исследования сверхтонкой структуры переходов на всех ступенях схемы фотоионизации каждого изотопа.

Сверхтонкое расщепление (энергетическое смещение подуровней Δv_F относительно "центра тяжести" мультиплета) описывается с помощью констант магнитного

дипольного, A , и электрического квадрупольного, B , взаимодействий и зависит от I, J и F [30]:

$$\Delta v_F = \frac{A}{2} K + \frac{B}{4} \frac{(3/2)K(K+1) - 2I(I+1)J(J+1)}{IJ(2I-1)(2J-1)}, \quad (1)$$

где

$$K = F(F+1) - J(J+1) - I(I+1). \quad (2)$$

Для каждой линии сверхтонкой структуры можно записать

$$E_e - E_g + \Delta v_{F'} - \Delta v_F = \frac{1}{\lambda_{FF'}}, \quad (3)$$

где E_e , E_g — энергия центров тяжести верхнего, e , и нижнего, g , мультиплетов (уровней) перехода, $\lambda_{FF'}$ [cm^{-1}] — длина волны линии $F \rightarrow F'$.

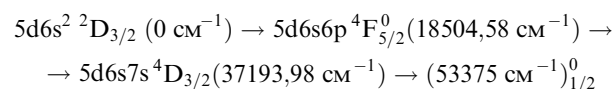
Энергия E центра тяжести уровня определяется из условия

$$\sum_F (E_F - E)(2F+1) = 0, \quad (4)$$

где E_F — энергия подуровня с моментом F .

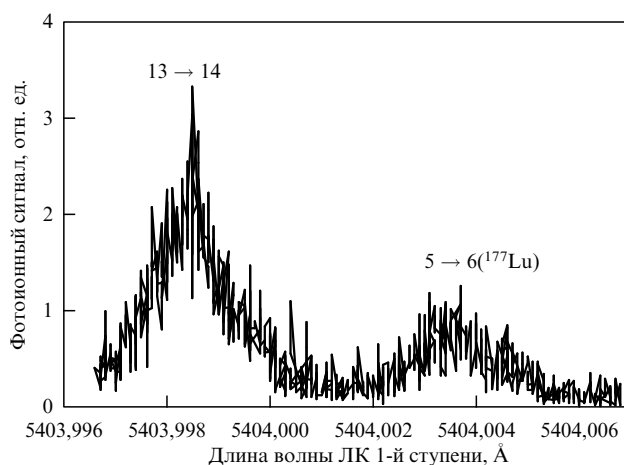
Разность энергий центров тяжести для разных изотопов определяет изотопический сдвиг уровня.

Результаты первых экспериментов по определению СТС схемы



для природных изотопов получены в работе [12]. В работе [13] впервые была исследована сверхтонкая структура перехода $5d6s^2 2D_{3/2} \rightarrow 5d6s6p 4F_{5/2}^0$ для радиоизотопа ^{177}Lu . Результаты исследования СТС на всех ступенях для изотопов ^{175}Lu , ^{176}Lu , ^{177}Lu представлены в работе [31], для изомера $^{177\text{m}}\text{Lu}$ — в [32].

Длины волн всех 12 линий СТС ^{175}Lu первой ступени $5d6s^2 2D_{3/2} \rightarrow 5d6s6p 4F_{5/2}^0$ были определены методом флуоресцентной спектроскопии. При сканировании длины волны ЛК1 в окрестности перехода (~ 20 ГГц)

**Рис. 3.** Фотоионный сигнал $^{177\text{m}}\text{Lu}$ и ^{177}Lu при сканировании длины волны ЛК первой ступени при ЛК2 ($14 \rightarrow 13$) = 5350,6445 Å и ЛК3 ($13 \rightarrow 12$) = 6180,1151 Å [32].

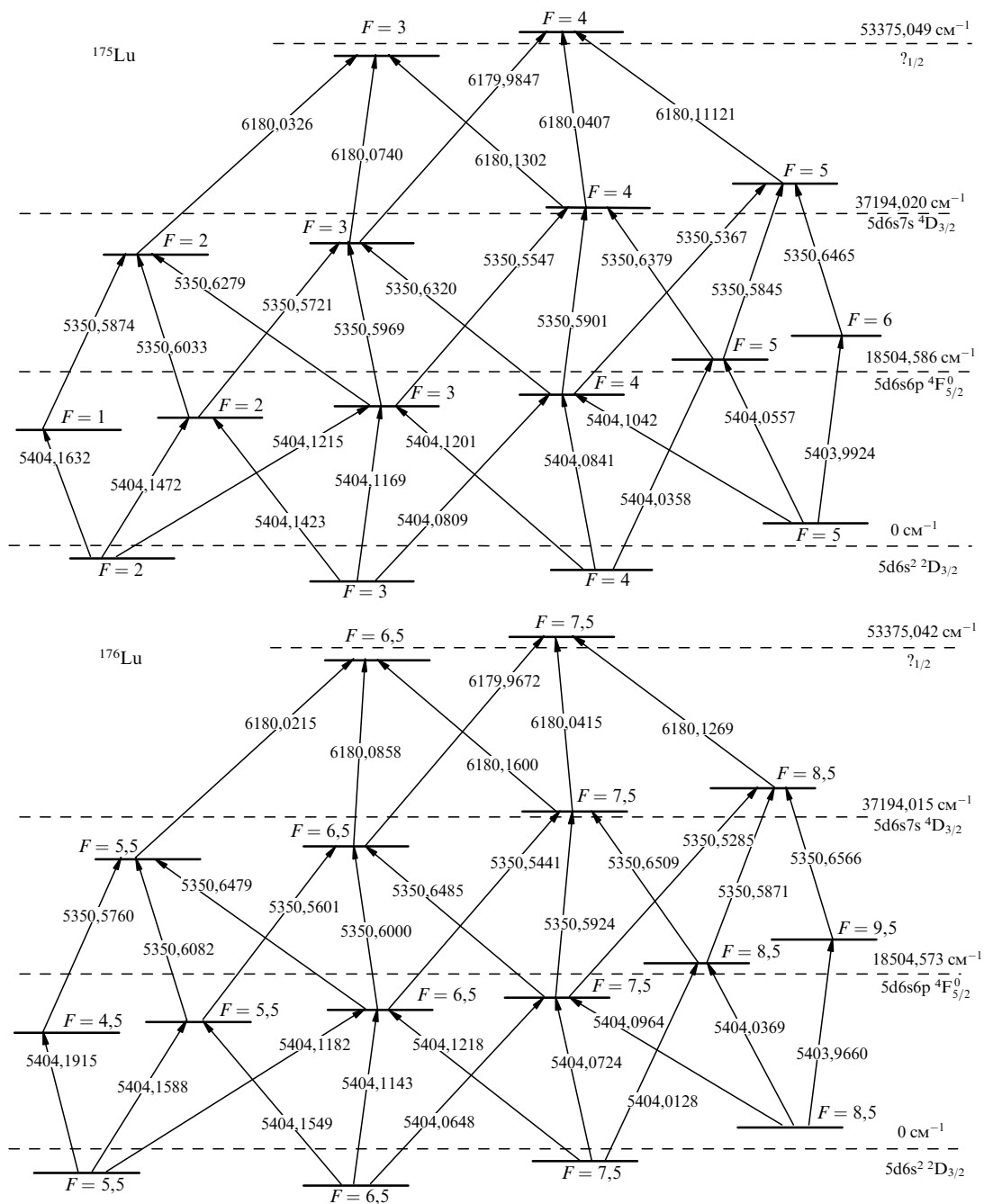


Рис. 4. Оптические схемы фотоионизации ^{175}Lu ($I = 7/2$) и ^{176}Lu ($I = 7$) (длины волн вакуумные, Å) [31].

проводилась запись сигнала флуоресценции (с первого возбуждённого уровня $5d6s6p\ ^4F_{5/2}^0$). Одновременно были измерены длины волн 7 из 12 линий ^{176}Lu . Некоторые из линий "затенялись" линиями ^{175}Lu главным образом из-за различия в природном содержании изотопов (~ 30 раз) и соответственно в сигналах флуоресценции. Идентификация линий по F и определение оставшихся линий ^{176}Lu были выполнены на основе данных расщепления уровней $5d6s^2\ ^2D_{3/2}$ и $5d6s6p\ ^4F_{5/2}^0$ [33–35].

Ввиду предельно низкого содержания изотопов ^{177}Lu и $^{177\text{m}}\text{Lu}$ в образце испарения ($\sim 10^{-5}$) исследование их сверхтонкой структуры проводилось методом резонансной ионизационной масс-спектропии. Длины волн линий первой ступени ^{177}Lu изначально определялись

расчётным путём. Вследствие равенства ядерных спинов ($I = 7/2$) и близости значений магнитных дипольных ядерных моментов ($\mu_{177} = 2,2384(14)\mu_N$ [36], $\mu_{175} = 2,2323(11)\mu_N$ [37]) картины сверхтонкого расщепления уровней ^{177}Lu и ^{175}Lu схожи. В этом случае все линии ^{177}Lu просто смещены на величину изотопического сдвига относительно соответствующих линий ^{175}Lu . Изотопический сдвиг на переходе первой ступени возбуждения $6s^2 \rightarrow 6s6p$ определяется полевой составляющей (массовая составляющая мала, не превышает 20 МГц [38, 39]). Полевой сдвиг обусловлен различием среднеквадратичных зарядовых радиусов $\delta\langle r^2 \rangle$ соответствующих изотопов. Согласно [35] разность среднеквадратичных зарядовых радиусов $\delta\langle r^2 \rangle$ для изотопов ^{177}Lu и ^{175}Lu приблизительно в три раза больше, чем для ^{176}Lu и ^{175}Lu ,

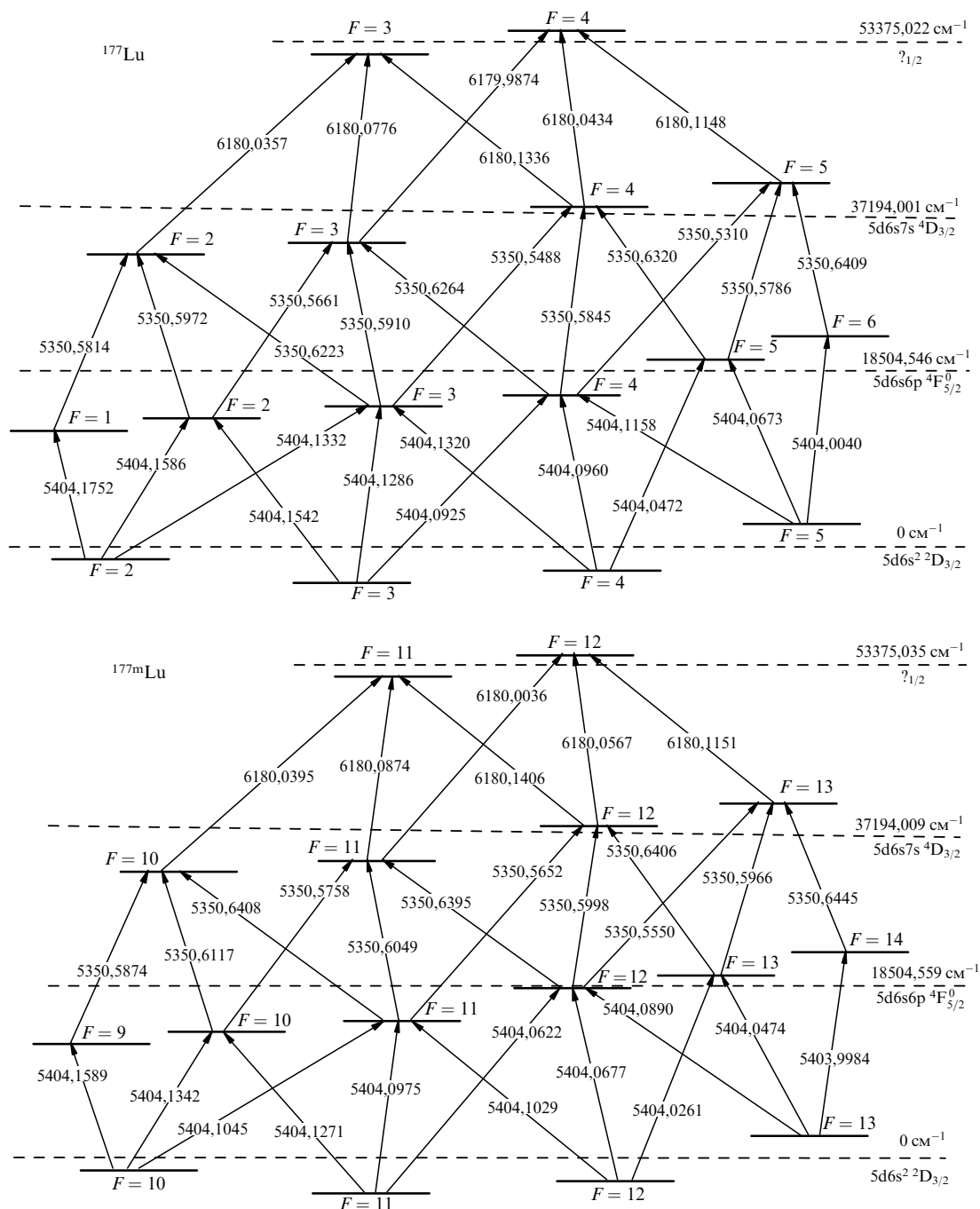


Рис. 5. Оптические схемы фотоионизации ^{177}Lu ($I = 7/2$) и $^{177\text{m}}\text{Lu}$ ($I = 23/2$) (длины волн вакуумные, Å) [31, 32].

отсюда следует, что изотопический сдвиг ^{177}Lu по отношению к ^{175}Lu превышает сдвиг между ^{176}Lu и ^{175}Lu также в три раза. Изотопический сдвиг уровня $5d6s6p\ ^4F_{5/2}^0$ для ^{176}Lu известен: $-388,8$ МГц [40], и соответственно -1150 МГц для ^{177}Lu .

Длины волн линий первой ступени для изомера $^{177\text{m}}\text{Lu}$ также изначально были спрогнозированы. При расчёте использовался тот факт, что отношения констант A и B верхних и нижних уровней переходов одинаковы для всех изотопов в пределах сверхтонкой магнитной аномалии [41] и для нижнего уровня $A_{177\text{m}}(5d6s^2\ ^2D_{3/2}) = 61,2(3)$ МГц и $B_{177\text{m}}(5d6s^2\ ^2D_{3/2}) = 2472(11)$ МГц [35]. Оценка изотопического сдвига, проведённая по аналогии с таковой в случае ^{177}Lu , составила -815 МГц. В результате оказа-

лось, что для $^{177\text{m}}\text{Lu}$ только одна линия первой ступени $10 \rightarrow 9$ в пределах 30 МГц совпадала с линией $2 \rightarrow 2$ основного изотопа ^{177}Lu и не могла быть разрешена спектрально.

Особенность экспериментов с изомером $^{177\text{m}}\text{Lu}$ заключалась в том, что, в отличие от имеющих разные атомные массы изотопов, регистрируемых отдельно с помощью традиционной резонансной ионизационной масс-спектропии, ^{177}Lu и $^{177\text{m}}\text{Lu}$ имеют практически одинаковые атомные массы. Различие между последними составляет $\sim 0,97$ МэВ [1], в то время как разность масс соседних изотопов равна приблизительно 1000 МэВ (масса одного нуклона). Такое различие недоступно для разрешения квадрупольными масс-спект-

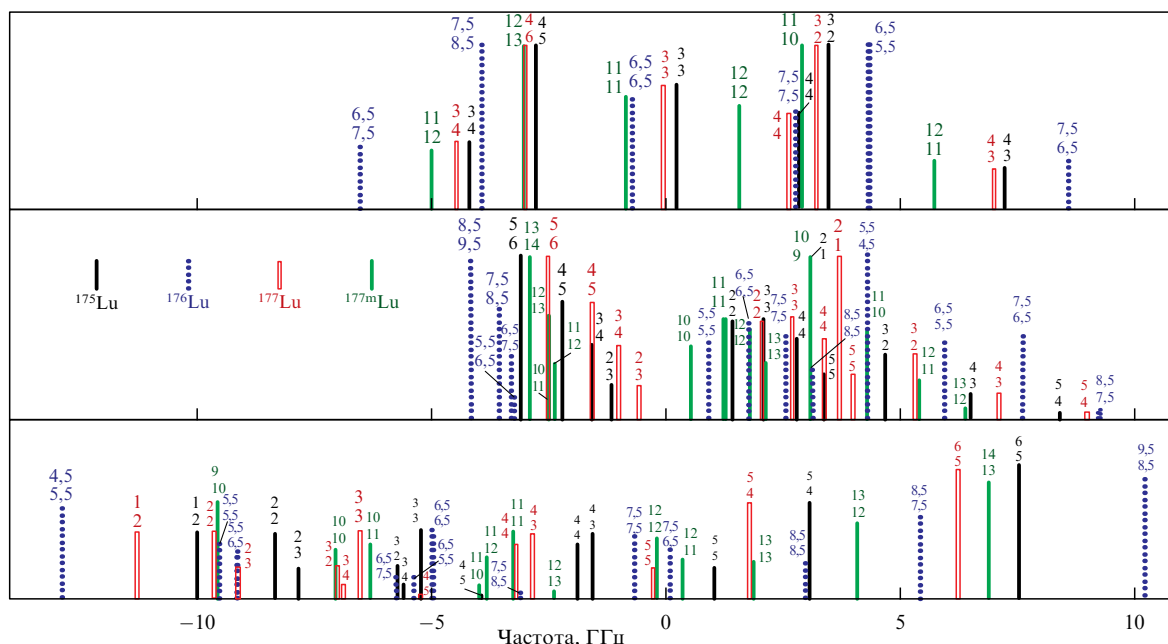


Рис. 6. Сверхтонкая структура переходов схемы фотоионизации $5d6s^2\ ^2D_{3/2}(0\text{ см}^{-1}) \rightarrow 5d6s6p\ ^4F_{5/2}^0(18504,58\text{ см}^{-1}) \rightarrow 5d6s7s\ ^4D_{3/2}(37193,98\text{ см}^{-1}) \rightarrow (53375\text{ см}^{-1})_{1/2}^0$ изотопов ^{175}Lu , ^{176}Lu , ^{177}Lu и ^{177m}Lu . В нижнем ряду — линии 1-го перехода, в среднем ряду — линии 2-го перехода, в верхнем ряду — 3-го перехода, относительная высота линий пропорциональна сечению перехода.

рометрами, поэтому в эксперименте могли быть зарегистрированы только линии, частоты которых отличались от СТС-линий основного изотопа ^{177}Lu более чем на ширину лазерной линии (100–150 МГц). На рисунке 3 приведён пример одновременной селективной регистрации фотоионов ^{177m}Lu и ^{177}Lu .

При исследовании СТС второго перехода $5d6s6p\ ^4F_{5/2}^0 \rightarrow 5d6s7s\ ^4D_{3/2}$ масс-спектрометр настраивался на регистрацию атомной массы 177, ЛК1 последовательно стабилизировался на расчётных значениях длин волн каждой из линий $F \rightarrow F'$ первого перехода. ЛК2 сканировался в окрестности 5305 Å и в резонансе с переходом переводил атомы на уровень $5d6s7s\ ^4D_{3/2}$, ЛК3 ионизировал атомы в континуум. В ходе каждого сканирования регистрировалось от одного до трёх пиков фотоионизации (переходы с $\Delta F = 0, \pm 1$). По равенству энергии квантов возбуждения с учётом сверхтонкого расщепления основного уровня $5d6s^2\ ^2D_{3/2}$ [35] были определены пики, соответствующие переходам на общие верхние подуровни F . Количество таких пиков, их расположение на спектрах позволили идентифицировать квантовые числа F нижнего и верхнего подуровней для всех линий второго перехода для изотопов ^{175}Lu , ^{176}Lu и ^{177}Lu , ^{177m}Lu (по 12 линий).

В ходе исследования СТС третьего перехода $5d6s7s\ ^4D_{3/2} \rightarrow (53375\text{ см}^{-1})_{1/2}^0$ ЛК1 и ЛК2 стабилизировались на линиях, определённых на предыдущих стадиях эксперимента. ЛК3 сканировался вблизи АИ перехода 6180 Å. Спектрально были разрешены и идентифицированы по F все линии третьего перехода (шесть линий). После этого уточнялись значения длин волн первой ступени. ЛК2 и ЛК3 стабилизировались на известных длинах волн, а ЛК1 сканировался вблизи расчётных резонансов.

Во избежание влияния двухфотонных процессов на точность измерений при исследовании СТС первой ступени импульсы ЛК2 и ЛК3 задерживались относи-

тельно импульса ЛК1 на длительность импульса (20 нс). При исследовании СТС второй и третьей ступеней все импульсы были разнесены во времени. Для определения центра каждой линии (точного значения длины волны $\lambda_{FF'}$) экспериментальные точки фотоионизационных резонансов аппроксимировались контуром Фойгта с использованием метода наименьших квадратов.

Результаты экспериментов в виде оптических схем фотоионизации для изотопов ^{175}Lu , ^{176}Lu , ^{177}Lu и ^{177m}Lu приведены на рис. 4, 5. На рисунке 6 все линии сведены на единой частотной шкале для каждой ступени схемы.

Система линейных уравнений (3) по всем зарегистрированным $\lambda_{FF'}$ -линиям была решена относительно констант A и B верхнего и нижнего уровней и $(E_e - E_g)$ посредством χ^2 -оптимизации для каждой ступени схемы (число $\lambda_{FF'}$, как правило, превышало число неизвестных в уравнении). Результаты сведены в табл. 2.

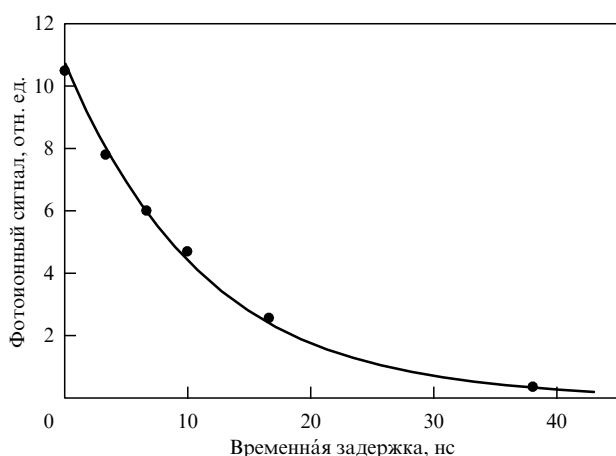
Из диаграммы на рис. 6 очевидно, что для изотопов ^{177}Lu и ^{177m}Lu существуют линии возбуждения со значительным (~ 1 ГГц) удалением от линий природных изотопов, которые могут быть использованы для проведения их селективного выделения из смеси изотопов облучённого естественного лютеция.

4. Время жизни уровней

Эффективность фотоионизации, а также выбор надлежащих интенсивностей лазерного излучения в значительной степени зависят от характеристик распада возбуждённых состояний. Если время жизни уровня оказывается сравнимым с длительностью лазерного импульса или меньшим его, то значительная часть частиц спонтанно покидает возбуждённый уровень. При этом оказывается критически важным, происходит ли распад обратно в предыдущее состояние, или частица переходит в другое стороннее состояние, не участвующее в схеме фотоиони-

Таблица 2. Энергия, изотопические сдвиги относительно ^{175}Lu и константы сверхтонкого расщепления уровней схемы фотоионизации для ^{175}Lu , ^{176}Lu , ^{177}Lu , $^{177\text{m}}\text{Lu}$

Уровень	Изотоп (спин ядра)	Энергия, см^{-1}	A , МГц	B , МГц	Изотоп. сдвиг, МГц	Литература
$5d6s^2\ ^2D_{3/2}$	175(7/2)	0	194,4(7)	1509(6)	0	[35]
	176(7)	0	137,6(5)	2132(11)	0	[35]
	177(7/2)	0	194,9(6)	1467(5)	0	[35]
	177m(23/2)	0	61,2(3) 61,2(8)	2472(11) 2466(40)	0	[35] [32]
$5d6s6p\ ^4F_{5/2}^0$	175	18504,5864(21)	987,5(2,2) 987,35(12)	1103(43) 1117,9(2,0)	0	[31] [50]
	176	18504,5733(19)	697,8(0,8) 698,25(15)	1566(29) 1572,2(3,0)	−390(14) −388,8(11)	[31] [50, 40]
	177	18504,5463(22)	988,8(2,8)	1059(55)	−1201(20)	[31]
	177m	18504,5593(20)	310,5(8)	1840(63)	−812(25)	[32]
$5d6s7s\ ^4D_{3/2}$	175	37194,0202(26)	1105,2(2,8)	74(33)	0	[31]
	176	37194,0149(22)	781,0(1,3)	78(30)	−160(30)	[31]
	177	37194,0007(27)	1107,6(5,8)	48(46)	−605(46)	[31]
	177m	37194,0082(27)	348(2)	134(68)	−360(57)	[32]
$(53375\ \text{см}^{-1})_{1/2}^0$	175	53375,0494(35)	1752(18)	0	0	[31]
	176	53375,0421(27)	1240,5(5,6)	0	−201(55)	[31]
	177	53375,0217(41)	1764(22)	0	−822(81)	[31]
	177m	53375,0324(43)	549(6)	0	−507(120)	[32]

**Рис. 7.** Зависимость фотоионного сигнала ^{175}Lu в канале ионизации $2 \rightarrow 1 \rightarrow 2 \rightarrow 3$ от величины временной задержки импульса ЛК третьей ступени относительно ЛК1 и ЛК2 и аппроксимирующая кривая $y = 10,8 \exp(-x/11,5)$ [31].

зации. В первом случае частица может быть повторно возбуждена лазерным излучением и в дальнейшем может дать вклад в продукт разделения, во втором случае частица оказывается потерянной и степень извлечения целевого изотопа снижается. В рассматриваемой схеме время жизни первого возбуждённого состояния $5d6s6p\ ^4F_{5/2}^0$ известно (составляет 472 нс), распад происходит в основное состояние $5d6s^2\ ^2D_{3/2}(0)$ и метастабильное состояние $5d6s^2\ ^2D_{5/2}$ ($1993\ \text{см}^{-1}$) с коэффициентами ветвления (branching ratio) 0,566 и 0,434 соответственно [42].

Информация о времени жизни второго возбуждённого состояния $5d6s7s\ ^4D_{3/2}$ в литературе отсутствует.

Таблица 3. Коэффициенты Эйнштейна A_{eg} переходов с уровней $18504,580\ \text{см}^{-1}$ и $37193,980\ \text{см}^{-1}$ [25]

Длина волны перехода (в воздухе), $\text{\AA}$	Энергия нижнего уровня g, см^{-1}	Энергия верхнего уровня e, см^{-1}	Коэффициент Эйнштейна A_{eg} , $10^6\ \text{с}^{-1}$
5402,566	0	18504,580	1,176
6055,017	1993,920	18504,580	1,126
5057,603	17427,280	37193,980	21,57
5349,139	18504,580	37193,980	32,01
6248,814	21195,370	37193,980	7,417
6354,875	21462,380	37193,980	8,622
6677,157	22221,680	37193,980	1,709
7640,084	24108,720	37193,980	7,864
7758,291	24308,090	37193,980	7,985

Время жизни уровня $5d6s7s\ ^4D_{3/2}$, определённое экспериментально (рис. 7), составило 11,5 нс [31]. Спонтанный распад с уровня $5d6s7s\ ^4D_{3/2}$ происходит, помимо $5d6s6p\ ^4F_{5/2}^0$, на шесть других уровней (табл. 3) [25]. Атомы, перешедшие на эти уровни, теряются для процесса фотоионизации, так как энергии кванта ЛК недостаточно для их возбуждения выше порога ионизации. Согласно табл. 3 коэффициенты ветвления в состояние $5d6s6p\ ^4F_{5/2}^0$ и в боковые уровни равны 0,367 и 0,633 соответственно, а время жизни $5d6s7s\ ^4D_{3/2}$ составляет 11,5 нс, что совпало с результатами эксперимента.

Ширина наблюдаемого фотоионизационного резонанса 900 МГц (рис. 8) связана как с шириной собственно автоионизационного состояния, так и с шириной второго возбуждённого состояния 150 МГц, с которого идёт фотоионизация. Поэтому уширение линии третьего пере-

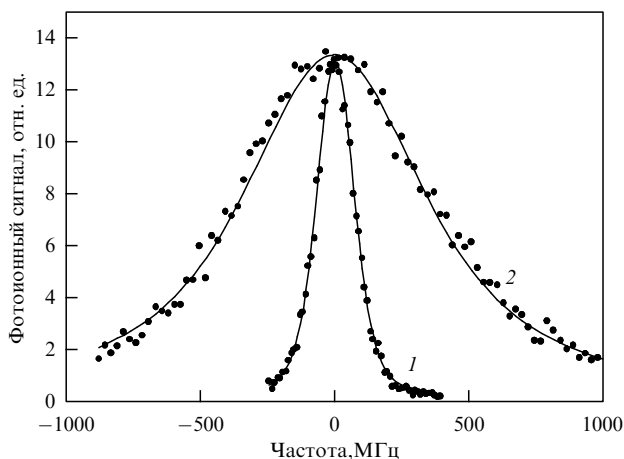


Рис. 8. Фотоионный сигнал ^{176}Lu (экспериментальные точки) при сканировании: ЛК2 вблизи (1) перехода $5d6s6p\ 4F_{5/2}^0 \rightarrow 5d6s7s\ 4D_{3/2}$ (4,5 $\rightarrow$ 5,5; 5350, 5760 Å) и ЛК3 вблизи (2) перехода $5d6s7s\ 4D_{3/2} \rightarrow \text{АИС}$ ($53375\ \text{см}^{-1}$) $_{1/2}^0$ (5,5 $\rightarrow$ 6,5; 6180,0215 Å). Сплошные кривые — контуры Фойгта с шириной $\Delta\nu_{9/2-11/2}$ (FWHM) = 150 МГц и $\Delta\nu_{11/2-13/2}$ (FWHM) = 900 МГц соответственно [31].

хода $5d6s7s\ 4D_{3/2} - \text{АИС}$ ($53375\ \text{см}^{-1}$) $_{1/2}^0$ на 750 МГц связано только с шириной верхнего уровня и соответствует его времени жизни $\tau = 0,21(4)\ \text{нс}$.

5. Сечения переходов

Уровни схемы фотоионизации имеют развитую сверхтонкую структуру (см. рис. 4–6), что вместе с правилами отбора даёт 44 различных сочетания подуровней — каналов, по которым может производиться фотоионизация. При определённой настройке лазеров фотоионизация осуществляется только по одному каналу, разница частот переходов различных каналов для каждого изотопа, как правило, значительно превосходит спектральную ширину лазеров. Каналы различаются по длинам волн и вероятностям переходов. Исследование процессов насыщения переходов схемы с целью определения эффективных сечений возбуждения различных компонент сверхтонкой структуры для изотопов ^{175}Lu , ^{176}Lu , ^{177}Lu и $^{177\text{m}}\text{Lu}$ выполнено в работе [43].

Парциальное сечение перехода между сверхтонкой компонентой F уровня 1 и компонентой F' уровня 2 можно записать [44] как

$$\sigma_{FF'} = C(F, J, F', J', I) \tilde{\sigma}_{12}, \quad (5)$$

где $\tilde{\sigma}_{12}$ — полное сечение перехода $1 \rightarrow 2$; $C(F, J, F', J', I)$ — угловой коэффициент, зависящий от угловых моментов, участвующих в переходе. В таблице 4 приведены значения угловых коэффициентов для изотопов ^{175}Lu , ^{176}Lu , ^{177}Lu и $^{177\text{m}}\text{Lu}$, рассчитанные по формулам из работы [44].

В экспериментах исследовалась зависимость фотоионного тока от интенсивности излучения ЛК, последовательно настроенного на каждую СТС-линию конкретного перехода схемы (рис. 9). Исследование линий первой и второй ступеней проводилось в разведённых во времени импульсах. В этом случае внутри каждого импульса атомная система может рассматриваться как двухуровневая и зависимость от интенсивности может быть получена из решения системы двух кинетических уравне-

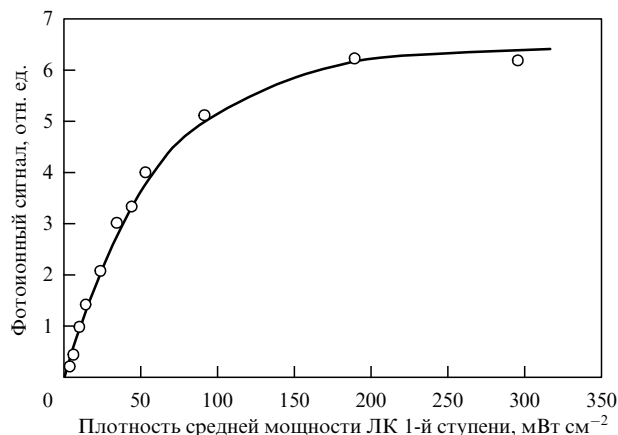


Рис. 9. Зависимость фотоионного сигнала ^{176}Lu от средней плотности мощности ЛК первой ступени $8,5 \rightarrow 7,5$ (экспериментальные точки) и аппроксимирующая кривая (7) со значением сечения перехода $\sigma_{8,5-7,5} = 3,2 \times 10^{-14}\ \text{см}^2$ [43].

ний:

$$\frac{dN_i}{dt} = -N_i w_{ik} + N_k w_{ki}, \quad (6)$$

$$\frac{dN_k}{dt} = N_i w_{ik} - N_k (w_{ki} + a). \quad (7)$$

Здесь N_i и N_k — числа частиц в нижнем и верхнем состояниях соответственно, a — частота распадов из состояния k , w_{ik} — частота лазерно-индуцированных переходов из состояния i в состояние k , $w_{ik} = \bar{I} \sigma_{ik} / (h\nu_{ik})$, где $\bar{I}$ — интенсивность лазерного излучения [Вт см^{-2}], σ_{ik} — сечение перехода [см^2], ν — частота перехода $i \rightarrow k$.

Решение системы (6), (7) при условии прямоугольного лазерного импульса имеет вид

$$N_k(\tau) = \frac{N_0 w_{ik}}{A} \left[\exp\left(\frac{-\bar{B} + \bar{A}}{2} \tau\right) - \exp\left(\frac{-\bar{B} - \bar{A}}{2} \tau\right) \right], \quad (8)$$

где

$$\bar{A} = \frac{g_i + g_k}{g_k} w_{ik} + a, \quad \bar{B} = \sqrt{\left(\frac{g_i + g_k}{g_k} w_{ik} + a\right)^2 - 4a w_{ik}},$$

g_i и g_k — статистические веса состояний i и k соответственно.

Исследование третьего перехода проводилось в совмещённых во времени импульсах при глубоком насыщении первого и второго переходов. В этих условиях эффект "узкого горла" возникает на третьем переходе и число фотоионов, образующихся к концу импульса, можно аппроксимировать функцией, полученной в работе [45]:

$$N_i(\tau) = \frac{N_0 w_{34}}{w_{34} + a_{3M}} \left[1 - \exp\left(-\frac{g_3(w_{34} + a_{3M})}{g_1 + g_2 + g_3} \tau\right) \right], \quad (9)$$

где N_0 и N_i — число частиц в начальном и конечном АИ-состояниях соответственно, g_1 , g_2 и g_3 — статистические веса начального, первого и второго возбуждённых состояний, a_{3M} — частота распадов из второго возбуждённого состояния, w_{34} — частота лазерно-индуцированных переходов из второго возбуждённого состояния в АИС, $w_{34} = \bar{I} \sigma_{34} / (h\nu_{34})$, σ_{34} — сечение третьего перехода [см^2], ν_{34} — частота третьего перехода.

Таблица 4. Угловые коэффициенты сечений $C(F, J, F', J', I)$ [43]

$5d6s^2\ ^2D_{3/2}$	1-й переход	$5d6s6p\ ^4F_{5/2}^0$	2-й переход	$5d6s7s\ ^4D_{3/2}$	3-й переход	АИС (53375 см ⁻¹)
F	$C(F, J, F', J', I)$	F	$C(F, J, F', J', I)$	F	$C(F, J, F', J', I)$	F
^{175}Lu и ^{177}Lu ($I = 7/2$)						
2	0,4 0,4 0,2	1 2 3	1 0,6 0,214	2	1	3
3	0,19 0,417 0,393	2 3 4	0,4 0,625 0,458	3	0,75 0,25	3 4
4	0,083 0,33 0,587	3 4 5	0,161 0,495 0,72	4	0,417 0,583	3 4
5	0,025 0,187 0,788	4 5 6	0,047 0,28 1	5	1	4
^{176}Lu ($I = 7$)						
5,5	0,556 0,328 0,116	4,5 5,5 6,5	1 0,492 0,149	5,5	1	6,5
6,5	0,29 0,418 0,291	5,5 6,5 7,5	0,507 0,627 0,383	6,5	0,711 0,289	6,5 7,5
7,5	0,13 0,367 0,503	6,5 7,5 8,5	0,223 0,551 0,671	7,5	0,378 0,622	6,5 7,5
8,5	0,04 0,22 0,741	7,5 8,5 9,5	0,067 0,329 1	8,5	1	7,5
^{177m}Lu ($I = 23/2$)						
10	0,603 0,30 0,094	9 10 11	1 0,455 0,128	10	1	11
11	0,332 0,414 0,254	10 11 12	0,545 0,62 0,351	11	0,694 0,306	11 12
12	0,154 0,367 0,465	11 12 13	0,251 0,571 0,646	12	0,361 0,639	11 12
13	0,048 0,238 0,716	12 13 14	0,078 0,354 1	13	1	12

Следует отметить, что некоторые линии в пределах 400 МГц совпадали с линиями возбуждения с других нижних подуровней [31]. Возбуждение и последующая ионизация атомов с этих подуровней при увеличении интенсивности оказывали заметное влияние на ход зависимости фотоионного тока от интенсивности лазерного излучения и делали невозможным определение индивидуальных сечений этих переходов. К таким линиям относятся пары $2 \rightarrow 3$, $4 \rightarrow 3$ и $3 \rightarrow 4$, $4 \rightarrow 4$ для изотопов ^{175}Lu и ^{177}Lu , $5,5 \rightarrow 6,5$, $7,5 \rightarrow 6,5$ и $5,5 \rightarrow 5,5$, $6,5 \rightarrow 5,5$ для ^{176}Lu , $10 \rightarrow 11$, $12 \rightarrow 11$ и $11 \rightarrow 12$, $12 \rightarrow 12$ для ^{177m}Lu . Полные эффективные сечения каждого перехода извлекались по формуле (5) из условия достижения минимальной суммы квадратов отклонений от экспериментальных результатов измерений сечений СТС компо-

нент перехода. Результаты для ^{175}Lu , ^{177}Lu , ^{176}Lu и ^{177m}Lu приведены в табл. 5. Значения сечений ^{177}Lu не отличались от соответствующих значений для ^{175}Lu в пределах экспериментальных погрешностей.

6. Степень извлечения целевого изотопа при фотоионизации

Одним из важнейших параметров любого процесса разделения изотопов является доля атомов целевого изотопа, попадающая в продукт, — степень извлечения целевого изотопа из потока питания. Для лазерного фотоионизационного метода степень извлечения складывается из вероятности попадания испарённых атомов в облучаемую лазером зону, вероятности облучения

Таблица 5. Полные эффективные сечения переходов схемы фотоионизации $5d6s^2\ ^2D_{3/2} \rightarrow 5d6s6p\ ^4F_{5/2}^0 \rightarrow 5d6s7s\ ^4D_{3/2} \rightarrow (53375\text{ см}^{-1})_{1/2}^0$ [43]

Изотоп	$\tilde{\sigma}_{01}, \text{ см}^2$	$\tilde{\sigma}_{12}, \text{ см}^2$	$\tilde{\sigma}_{23}, \text{ см}^2$
$^{175}\text{Lu}, ^{177}\text{Lu}$	$4,5(1) \times 10^{-13}$	$1,6(3) \times 10^{-12}$	$1,2(2) \times 10^{-14}$
^{176}Lu	$5(1) \times 10^{-13}$	$3,5(5) \times 10^{-12}$	$1,5(3) \times 10^{-14}$
$^{177\text{m}}\text{Lu}$	$5(1) \times 10^{-13}$	$2,3(3) \times 10^{-12}$	$2,1(3) \times 10^{-14}$

непрерывного потока атомов импульсным лазерным излучением, вероятности фотоионизации облучённого атома и, наконец, вероятности извлечения фотоиона на коллектор продукта. Все перечисленные факторы зависят от конкретной конфигурации разделительной ячейки, за исключением вероятности фотоионизации облучённых атомов, которая зависит от свойств переходов схемы фотоионизации и выбранных интенсивностей лазерного излучения на каждой ступени. С увеличением интенсивности степень извлечения возрастает практически линейно при малых интенсивностях, при дальнейшем увеличении наблюдается замедление роста и происходит насыщение. Физическая причина насыщения заключается в исчерпании атомов в основном состоянии. В этом случае можно считать, что все атомы, находившиеся на начальном уровне, переводятся в фотоионы. Например, при фотоионизации радиоизотопа ^{177}Lu с подуровня $F = 5$ сверхтонкой структуры ($F = 2, 3, 4, 5$) основного состояния $5d6s^2\ ^2D_{3/2}$ степень извлечения может достигать $0,34 \times 0,72 = 0,24$, где множитель 0,72 — заселённость основного состояния при температуре испарения лютетия 1700°C , а 0,34 — доля атомов, находящихся на подуровне с $F = 5$.

Для подтверждения возможности достижения заданной степени извлечения использовался метод прямого измерения [46] (рис. 10), идея которого заключалась в том, чтобы минимизировать влияние геометрических факторов и сделать вероятность облучения испарённых атомов близкой к единице. Тонкий пучок атомов из испарителя проходил через протяжённую (8 см) область

Таблица 6. Результаты измерений степени извлечения ^{175}Lu в канале $5 \rightarrow 6 \rightarrow 5 \rightarrow 4$ [45]

Средняя плотность мощности ЛК, Вт см ⁻²			Степень опустошения основного состояния	Степень извлечения
1-я ступень	2-я ступень	3-я ступень		
0,025	0,025	2,5	$0,88 \pm 0,05$	$0,17 \pm 0,03$

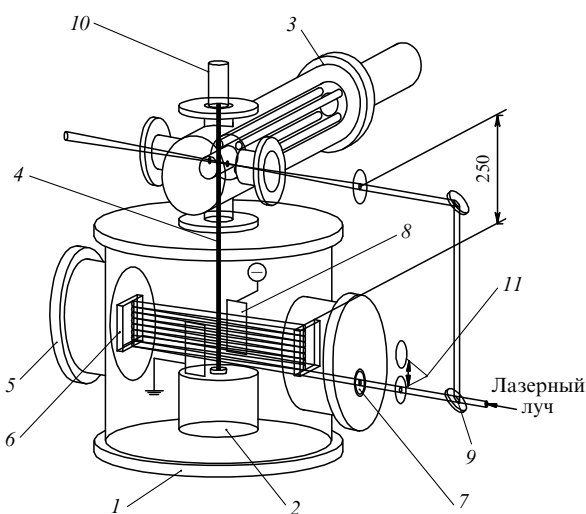
Таблица 7. Результаты измерения степени извлечения с использованием различных СТС-компонент переходов [45]

Канал фотоионизации	Доля атомов на нижнем подуровне F	Относительная заселённость нижнего подуровня F	Относительная степень извлечения
$5 \rightarrow 6 \rightarrow 5 \rightarrow 4$	0,34	1	1
$4 \rightarrow 4 \rightarrow 5 \rightarrow 4$	0,28	0,82	$0,75 \pm 0,1$
$3 \rightarrow 4 \rightarrow 5 \rightarrow 4$	0,22	0,64	$0,6 \pm 0,1$
$2 \rightarrow 1 \rightarrow 2 \rightarrow 3$	0,16	0,46	$0,5 \pm 0,1$

облучения. Область формировалась в результате многократного прохождения лазерного эгрета (излучения с тремя длинами волн), что делало вероятность облучения атомов с учётом максвелловского распределения атомных скоростей равной 97 %. Зона облучения находилась между металлическими пластинами с разностью потенциалов в несколько сотен вольт. Это обеспечивало практически стопроцентное удаление фотоионов из потока пара, который в дальнейшем диафрагмировался и попадал на кварцевый датчик измерения толщины напыления. Доля атомов, извлекаемых из потока за счёт фотоионизации, определялась из сравнения скоростей роста плёнки на датчике при открытом и закрытом лазерном излучении. Наличие масс-спектрометра над рабочим объёмом с ответвлением небольшой части лазерного излучения позволяло измерять долю атомов, оставшихся в основном состоянии, и таким образом оценивать степень опустошения начального состояния.

В таблице 6 представлены результаты измерения степени извлечения и опустошения основного состояния в канале $5 \rightarrow 6 \rightarrow 5 \rightarrow 4$ фотоионизации ^{175}Lu . Степень извлечения напрямую зависит от заселённости начального состояния (стартового подуровня), что подтверждается экспериментально (табл. 7). Наибольшее извлечение 17 % было достигнуто в канале $5 \rightarrow 6 \rightarrow 5 \rightarrow 4$. Судя по температурной заселённости основного состояния и доли атомов на подуровне с $F = 5$, вероятность фотоионизации облучённого атома составила 70 %. Данная величина оказалась заметно ниже измеренной степени опустошения начального состояния 88 %. Причина этого, вероятно, кроется в интенсивном распаде со второго возбуждённого состояния, время жизни которого достаточно мало — 11,5 нс [31].

В работе [45] получена формула (9) для оценки влияния распада на вероятность фотоионизации облучённого атома. Множитель $w_{34}/(w_{34} + a_{3M})$ описывает конкуренцию процессов фотоионизации и спонтанного распада второго возбуждённого состояния. Этот множитель относительно быстро (при $w_{34} = a_{3M}$) достигает значения 0,5, однако дальнейшее его возрастание с увеличением w_{34} сильно замедляется и даже при $w_{34} = 5a_{3M}$ он составляет всего 0,83. Достижение степени

**Рис. 10.** Установка для прямого измерения степени извлечения: 1 — вакуумная камера, 2 — термический испаритель, 3 — квадрупольный масс-спектрометр, 4 — атомный пучок, 5 — фланец многопроходной системы, 6 — зеркало многопроходной системы, 7 — окно ввода лазерного излучения, 8 — экстракционная система, 9 — полупрозрачное зеркало, 10 — кварцевый датчик напыления, 11 — заслонка лазерного луча [45].

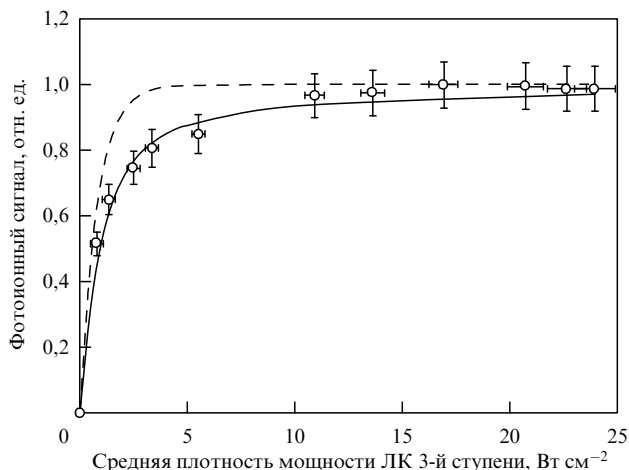


Рис. 11. Зависимость фотоионного сигнала от средней плотности мощности ЛК третьей ступени (экспериментальные точки) в канале $5 \rightarrow 6 \rightarrow 5 \rightarrow 4$. Сплошная кривая — расчёт по формуле (8) с сечением $\sigma_{34} = 1,2 \times 10^{-14} \text{ см}^2$ и частотой распадов $a_{3M} = 87 \text{ МГц}$, штриховая кривая — $\sigma_{34} = 1,2 \times 10^{-14} \text{ см}^2$ без распада, $a_{3M} = 0$ [45].

фотоионизации свыше 0,9 требует настолько значительного увеличения w_{34} , что это, по-видимому, выходит за рамки рациональности. Влияние распада хорошо иллюстрирует рис. 11, на котором приведена экспериментальная зависимость фотоионного сигнала от интенсивности ЛК3, измеренная в широком диапазоне мощностей. Видно, что в отсутствие распада (штриховая кривая) насыщение наступает при средней плотности мощности около $2,5 \text{ Вт см}^{-2}$. При наличии распада (экспериментальные точки) сигнал продолжает возрастать при значениях средней плотности мощности до 17 Вт см^{-2} , а при $2,5 \text{ Вт см}^{-2}$ сигнал составляет $\sim 0,7$ от насыщенного значения.

При одновременном воздействии лазерных импульсов первой и второй ступеней значительное влияние на фотоионизацию оказывают многофотонные процессы, которые приводят к снижению селективности. Для увеличения селективности можно использовать задержку импульсов ЛК2 и ЛК3 относительно импульса первой ступени, учитывая тот факт, что время жизни первого возбуждённого состояния достаточно велико — 472 нс . Однако при этом неизбежно снижение степени извлечения, поскольку для фотоионизации становятся доступными не все атомы, находившиеся на начальном подуровне $F = 5$, а только заселившие первое возбуждённое состояние $F = 6$ после окончания импульса первой ступени. В случае насыщения доля таких атомов равна $g_2/(g_1 + g_2) = 0,54$, где g_1 и g_2 — статистические веса основного и первого возбуждённого состояний соответственно. Непосредственное измерение показало, что при задержке ЛК2 и ЛК3 на 20 нс степень извлечения составила $0,6 \pm 0,1$ от измеренного в совмещённых импульсах, что находится в хорошем согласии с приведённой оценкой.

7. Селективность фотоионизации

При лазерном разделении изотопов селективность, достигаемая на этапе фотоионизации, наряду со степенью извлечения является важнейшим параметром процесса разделения.

Селективность, определяемая как отношение вероятностей фотоионизации целевого изотопа W_i и нецелевого изотопа W :

$$S = \frac{W_i}{W}, \quad (10)$$

в первую очередь зависит от величины спектрального контраста — доли лазерного излучения, попадающего в контур поглощения нецелевого изотопа, а также от соотношения между спектральной шириной лазерного излучения и разностью частот линий поглощения целевого и нецелевого изотопов. При начальном содержании целевого изотопа C_f количество фотоионов целевого изотопа составит $W_i C_f$, количество нецелевого — соответственно $W(1 - C_f)$ и концентрация C_p целевого изотопа в ансамбле фотоионов составит

$$C_p = \frac{W_i C_f}{W(1 - C_f) + W_i C_f}. \quad (11)$$

Определяя из (11) отношение W_i/W , получаем выражение для селективности через измеряемые в эксперименте величины:

$$S = \frac{W_i}{W} = \frac{C_p(1 - C_f)}{(1 - C_p)C_f}. \quad (12)$$

Селективность фотоионизации исследовалась для изотопов ^{176}Lu , ^{177}Lu и $^{177\text{m}}\text{Lu}$. Использование узких атомных пучков с доплеровской шириной $\sim 100 \text{ МГц}$ позволяет предполагать отсутствие влияния эффекта Доплера на селективность фотоионизации.

Из диаграммы (см. рис. 6) видно, что сверхтонкая структура ^{176}Lu имеет наибольшую ширину (по шкале частот) на всех ступенях, а крайние линии первого перехода ($5,5 \rightarrow 4,5$ и $8,5 \rightarrow 9,5$) отстоят от ближайших линий доминантного изотопа ^{175}Lu на величину $\sim 3 \text{ ГГц}$. При равенстве сечений по ступеням (см. табл. 5) заселённость основного подуровня с $F = 8,5$ в 1,55 раза выше, поэтому с точки зрения извлечения фотоионизация через $8,5 \rightarrow 9,5$ предпочтительнее. Динамический диапазон масс-спектрометра ~ 300 ограничивал прямое измерение селективности фотоионизации ^{176}Lu до уровня 10^4 . Посредством косвенных измерений селективность фотоионизации ^{176}Lu в канале $8,5 \rightarrow 9,5 \rightarrow 8,5 \rightarrow 7,5$ была оценена на уровне $\sim 10^6$ при средних плотностях мощности ЛК по ступеням 10 мВт см^{-2} , 10 мВт см^{-2} и 3000 мВт см^{-2} .

Выбор селективных каналов для фотоионизации радионуклида ^{177}Lu не так очевиден. На основе проведённых исследований СТС (см. рис. 4, 5) были определены пять каналов возбуждения ^{177}Lu (табл. 8). Частотные сдвиги относительно ^{175}Lu на всех каналах оказались схожими и в среднем составили значения по ступеням $1,2 \text{ ГГц}$, $-0,6 \text{ ГГц}$, $0,2 \text{ ГГц}$. Сверхтонкая структура изотопа ^{176}Lu иная, спин ядра $I = 7$, $\mu_{176} = 3,1692(45) \mu_N$ [37] и ближайшие каналы оказались сдвинутыми по частоте на $1-3 \text{ ГГц}$ сразу по двум или трём ступеням. По отношению к изомеру $^{177\text{m}}\text{Lu}$ каналы $5 \rightarrow 6 \rightarrow 5 \rightarrow 4$ и $2 \rightarrow 1 \rightarrow 2 \rightarrow 3$ можно считать селективными по первой ступени, каналы $4 \rightarrow 3 \rightarrow 4 \rightarrow 3$, $2 \rightarrow 3 \rightarrow 4 \rightarrow 3$ — по второй и третьей ступеням.

Селективность фотоионизации ^{177}Lu была измерена на пяти каналах (табл. 9) [47]. Концентрация целевого изотопа в образце испарения составляла $C_{f177} =$

Таблица 8. Селективные каналы фотоионизации ^{177}Lu (по компонентам СТС)* [31, 32]

Канал фотоионизации ^{177}Lu	Канал ионизации Сдвиг линий по ступеням относительно ^{177}Lu , МГц		
	^{175}Lu	^{176}Lu	$^{177\text{m}}\text{Lu}$
$5 \rightarrow 6 \rightarrow 5 \rightarrow 4$	$5 \rightarrow 6 \rightarrow 5 \rightarrow 4$ 1192; -587; 212	$7,5 \rightarrow -8,5 \rightarrow 7,5 \rightarrow 6,5$ -904; -1050; -3550	$13 \rightarrow 14 \rightarrow 13 \rightarrow 12$ +575; -377; -24
$5 \rightarrow 5 \rightarrow 5 \rightarrow 4$	$5 \rightarrow 5 \rightarrow 5 \rightarrow 4$ 1192; -618; 212	$6,5 \rightarrow 7,5 \rightarrow 7,5 \rightarrow 6,5$ 257; -1446; -3550	$12 \rightarrow 12 \rightarrow 13 \rightarrow 12$ -40; +2389; -24
$4 \rightarrow 3 \rightarrow 4 \rightarrow 3$	$4 \rightarrow 3 \rightarrow 4 \rightarrow 3$ 1222; -618; 267	$7,5 \rightarrow 6,5 \rightarrow 7,5 \rightarrow 6,5$ 1048; 493; -2074	$10 \rightarrow 10 \rightarrow 11 \rightarrow 11$ -226; -2829; +3629
$2 \rightarrow 3 \rightarrow 4 \rightarrow 3$	$2 \rightarrow 3 \rightarrow 4 \rightarrow 3$ 1202; -618; 267	$7,5 \rightarrow 6,5 \rightarrow 7,5 \rightarrow 6,5$ 1171; 493; -2074	$10 \rightarrow 10 \rightarrow 11 \rightarrow 11$ -100; -2829; +3629
$2 \rightarrow 1 \rightarrow 2 \rightarrow 3$	$2 \rightarrow 1 \rightarrow 2 \rightarrow 3$ 1233; -629; 244	$5,5 \rightarrow 5,5 \rightarrow 6,5 \rightarrow 6,5$ 1685; 2232; -3935	$10 \rightarrow 9 \rightarrow 10 \rightarrow 11$ +1674; -629; -298

* Для каждой схемы указаны ближайшие каналы возбуждения изотопов ^{175}Lu , ^{176}Lu , $^{177\text{m}}\text{Lu}$ и частотные расстояния до ^{177}Lu на всех ступенях ионизации.

Таблица 9. Селективность S фотоионизации ^{177}Lu по разным каналам [47]

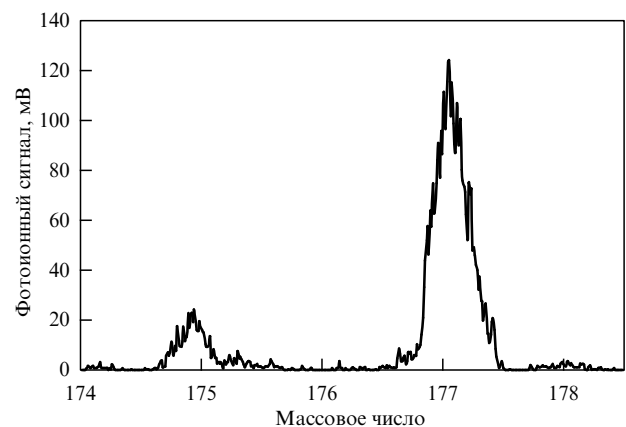
Канал фотоионизации ^{177}Lu	Относительная заселённость нижнего подуровня	C_{p177} *	S
$5 \rightarrow 6 \rightarrow 5 \rightarrow 4$	0,34	0,80(2)	$1,2(2) \times 10^5$
$5 \rightarrow 5 \rightarrow 5 \rightarrow 4$	0,34	0,90(1)	$2,7(3) \times 10^5$
$4 \rightarrow 3 \rightarrow 4 \rightarrow 3$	0,28	0,92(1)	$3,4(5) \times 10^5$
$2 \rightarrow 3 \rightarrow 4 \rightarrow 3$	0,16	0,88(2)	$2,2(4) \times 10^5$
$4/2 \rightarrow 3^{**} \rightarrow 4 \rightarrow 3$	0,16/0,28	0,93(1)	$4,0(6) \times 10^5$

* $C_{p176} < 0,02$ на всех каналах.

** Частота излучения ЛК1 настроена между линиями $4 \rightarrow 3$ и $2 \rightarrow 3$.

$= (3,4 \pm 0,4) \times 10^{-5}$. Средние плотности мощности ЛК по ступеням: 3 мВт см $^{-2}$, 3 мВт см $^{-2}$, 2000 мВт см $^{-2}$. Импульсы ЛК2 и ЛК3 задерживались относительно импульса первой ступени на 20 нс. Сигналы фотоионного тока ^{177}Lu по всем каналам ионизации являлись соизмеримыми и соответствовали области перехода фототока в режим насыщения (по свету). Селективность по всем каналам составила в среднем $S = 2,7(4) \times 10^5$. Пример записи масс-спектра фотоионов в ходе селективной фотоионизации ^{177}Lu по каналу $5 \rightarrow 6 \rightarrow 5 \rightarrow 4$ приведён на рис. 12. В совмещённых во времени импульсах селективность фотоионизации по каналу $5 \rightarrow 6 \rightarrow 5 \rightarrow 4$ снижалась вдвое, до $0,6 \times 10^5$, что объясняется влиянием двухфотонных процессов на первом и втором переходах [47]. Интенсивность двухфотонного процесса определяется дефектом суммы квантов лазеров первой и второй ступеней и энергии второго возбуждённого состояния. Для нецелевого изотопа ^{175}Lu в канале $5 \rightarrow 6 \rightarrow 5 \rightarrow 4$ дефект составляет ~ 600 МГц при разности частот на первом переходе 1192 МГц. Последнее приводит к тому, что при совмещении во времени лазерных импульсов вероятность фотоионизации нецелевого ^{175}Lu возрастает в большей степени, чем для целевого ^{177}Lu , снижая селективность.

Селективность фотоионизации изомера $^{177\text{m}}\text{Lu}$ была определена на четырёх каналах (табл. 10, 11) [48]. Образец металлического лютеция облучался в потоке нейтронов $1,4 \times 10^{13}$ см $^{-2}$ с $^{-1}$ в течение 49 сут и затем вы-

Рис. 12. Масс-спектр фотоионов ^{177}Lu при фотоионизации по каналу $5 \rightarrow 6 \rightarrow 5 \rightarrow 4$ [47].

держивался в течение двух месяцев. В результате момент проведения экспериментов концентрация изомера составляла $C_{f177\text{m}} = (1,2 \pm 0,1) \times 10^{-6}$. Измеренное отношение активностей ^{177}Lu и $^{177\text{m}}\text{Lu}$ ($0,2 \pm 0,03$) соответствовало концентрации ^{177}Lu ($1 \pm 0,2$) $\times 10^{-8}$, что позволяло пренебрегать вкладом фотоионов основного изотопа в фотоионный сигнал на массе 177. Средние плотности мощности лазеров по ступеням составляли 6 мВт см $^{-2}$, 4 мВт см $^{-2}$ и 2500 мВт см $^{-2}$ соответственно. Импульсы ЛК2 и ЛК3 задерживались относительно ЛК1 на 20 нс. Масс-спектры фотоионов $^{177\text{m}}\text{Lu}$ по каналам ионизации $12 \rightarrow 13 \rightarrow 13 \rightarrow 12$ и $13 \rightarrow 13 \rightarrow 13 \rightarrow 12$ приведены на рис. 13.

Наибольшая селективность $S = 5,5(5) \times 10^5$ ($C_{p177\text{m}} = 0,4$) была получена в ходе фотоионизации по каналу $12 \rightarrow 13 \rightarrow 13 \rightarrow 12$. Снижение селективности на каналах $13 \rightarrow 13 \rightarrow 13 \rightarrow 12$ и $10 \rightarrow 10 \rightarrow 10 \rightarrow 10$, скорее всего, обусловлено меньшими сдвигами линий ^{175}Lu на первой ступени. Причина относительно низкой селективности в канале $12 \rightarrow 12 \rightarrow 13 \rightarrow 12$ с наибольшим изотопическим сдвигом 1,23 ГГц, по-видимому, заключается в следующем. Несмотря на то что генерация 3Г ЛК проходит в основном на одной продольной моде (одномодовый режим генерации), существует вероятность появления слабых генераций на боковых (соседних) модах. Частотное

Таблица 10. Селективные каналы ионизации ^{177m}Lu (по компонентам СТС)* [48]

Канал фотоионизации ^{177m}Lu	Канал ионизации Сдвиг линий по ступеням относительно ^{177m}Lu , МГц		
	^{175}Lu	^{176}Lu	^{177}Lu
$12 \rightarrow 13 \rightarrow 13 \rightarrow 12$	$4 \rightarrow 5 \rightarrow 5 \rightarrow 4$ -996; +1267; +237	$8,5 \rightarrow 8,5 \rightarrow 8,5 \rightarrow 7,5$ -1110; +995; -932	$4 \rightarrow 5 \rightarrow 5 \rightarrow 4$ -2167; +1885; +24
$13 \rightarrow 13 \rightarrow 13 \rightarrow 12$	$5 \rightarrow 5 \rightarrow 5 \rightarrow 4$ -852; +1267; +237	$8,5 \rightarrow 8,5 \rightarrow 8,5 \rightarrow 7,5$ +1078; +995; -932	$4 \rightarrow 5 \rightarrow 5 \rightarrow 4$ +20; +1885; +24
$12 \rightarrow 12 \rightarrow 13 \rightarrow 12$	$5 \rightarrow 5 \rightarrow 5 \rightarrow 4$ +1232; -3005; +237	$6,5 \rightarrow 7,5 \rightarrow 8,5 \rightarrow 7,5$ +298; +2858; -932	$5 \rightarrow 5 \rightarrow 5 \rightarrow 4$ +40; -2387; +24
$10 \rightarrow 10 \rightarrow 10 \rightarrow 11$	$3 \rightarrow 2 \rightarrow 2 \rightarrow 3$ -832; +880; +545	$7,5 \rightarrow 6,5 \rightarrow 6,5 \rightarrow 6,5$ +1274; +1225; -3640	$2 \rightarrow 3 \rightarrow 2 \rightarrow 3$ +103; -1110; +298

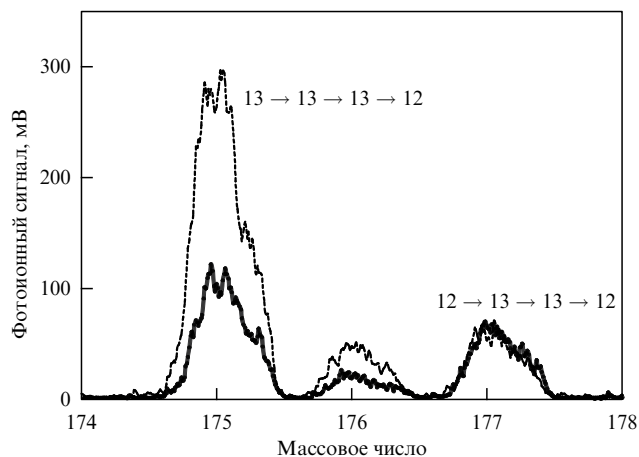
* Для каждой схемы указаны ближайшие каналы возбуждения изотопов ^{175}Lu , ^{176}Lu , ^{177}Lu и частотные расстояния до ^{177m}Lu на всех ступенях ионизации.

Таблица 11. Селективность S фотоионизации ^{177m}Lu по разным каналам фотоионизации [48]

Канал фотоионизации ^{177m}Lu	Относительная заселённость нижнего подуровня F	$S \times 10^5$		
		$S_{\text{rel } 175}$	$S_{\text{rel } 176}$	S
$12 \rightarrow 13 \rightarrow 13 \rightarrow 12$	0,34	7,5(5)	0,62(5)	5,5(5)
$13 \rightarrow 13 \rightarrow 13 \rightarrow 12$	0,34	2,0(2)	0,32(2)	1,8(2)
$12 \rightarrow 12 \rightarrow 13 \rightarrow 12$	0,28	2,4(2)	0,48(5)	2,2(2)
$10 \rightarrow 10 \rightarrow 10 \rightarrow 11$	0,16	1,2(1)	0,17(2)	1,0(1)

расстояние между продольными модами определяется длиной резонатора и в нашем случае (110–140 мм) лежит в диапазоне 1100–1360 МГц. Очевидно, что приближение боковой моды к частоте перехода нецелевого изотопа $12 \rightarrow 12$ влияет на селективность процесса и может стать особенно заметным в условиях низкого содержания изомера. Судя по спектральному профилю линии генерации, снижение селективности возможно уже при содержании в боковых модах 10^{-4} лазерной мощности.

В совмещённых во времени импульсах наблюдалось резкое (на два порядка величины) снижение селективности фотоионизации ^{177m}Lu , обусловленное влиянием

**Рис. 13.** Масс-спектр фотоионов ^{177m}Lu при фотоионизации по каналам $12 \rightarrow 13 \rightarrow 13 \rightarrow 12$ и $13 \rightarrow 13 \rightarrow 13 \rightarrow 12$ [48].

двухфотонных процессов. Из-за низкого содержания изомера селективность в этом случае могла быть измерена только на канале $12 \rightarrow 13 \rightarrow 13 \rightarrow 12$ — она составила $S = 6 \times 10^3$.

Следует отметить, что для достижения высокого уровня селективности фотоионизации по данной схеме требуется уделять особое внимание параметрам излучения ЛК третьей ступени, а именно уровню фоновой составляющей. Дело в том, что излучение ЛК всегда содержит неселективное по частоте усиленное спонтанное излучение (УСИ). Несмотря на то что уровень УСИ импульсных ЛК, как правило, не превышает нескольких процентов и высвечивается в широком спектральном диапазоне флуоресценции красителя (несколько десятков нанометров), его влияние на селективность иногда может стать заметным. Как обнаружено в работе [49], УСИ ЛК3 приводит к вовлечению в процесс ионизации нецелевых изотопов с нижнего метастабильного уровня $5d6s^2 \ ^2D_{5/2}$ (1993 см^{-1}) (см. рис. 2), при этом высокая интенсивность данного процесса была обусловлена следующими факторами:

- заметной заселённостью метастабильного уровня 0,25 (при температуре испарения лютетия 1700°C);
- совпадением максимума флуоресценции красителя ЛК3 (Sulforhodamine 640) с линией $6055 \text{ \AA}$ перехода $5d6s^2 \ ^2D_{5/2} \rightarrow 5d6s6p \ ^4F_{5/2}^0$;
- повышенным уровнем УСИ при работе ЛК на краю диапазона генерации красителя (618 нм);
- требованием высокого уровня мощности ЛК последней ступени (фотоионизации).

Тщательная фильтрация спектра излучения ЗГ ЛК, проведённая в работе [49], позволила эффективно снизить УСИ ЛК третьей ступени, подавить захват нецелевых изотопов и увеличить селективность процесса в 20–40 раз.

8. Нарботка весовых количеств ^{176}Lu

Нарботка весовых количеств изотопа ^{176}Lu проводилась с использованием разделительной ячейки, созданной для разделения изотопов неодима [46]. Испаритель I (рис. 14а) формировал поток атомов лютетия природного изотопного состава протяжённостью вдоль лазерного луча 30 см с коллимацией (ограничением полного угла разлёта атомов) в поперечном и продольном направлениях 45° . С одной стороны от потока, в тени

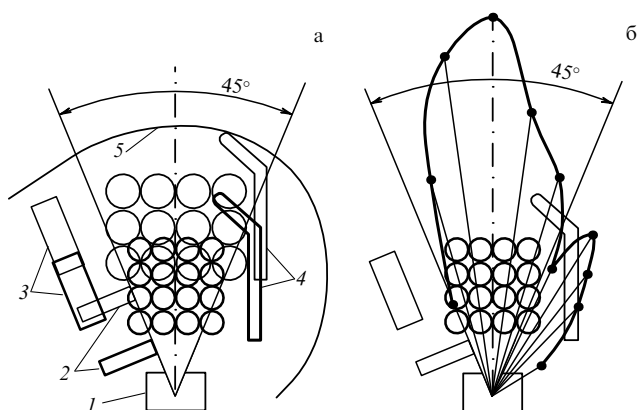


Рис. 14. (а) Рабочий объём: 1 — испаритель, 2 — водоохлаждаемая защита коллектора, 3 — коллектор фотоионов, 4 — дефлектор, 5 — контрольная пластина отвала. Вариант 1 с лазерными лучами диаметром 20 мм (жирные линии). Вариант 2 с лазерными лучами диаметром 30 мм (тонкие линии). (б) Угловое распределение потока атомов, полученное по анализу пластин 5.

водоохлаждаемой защиты 2, располагался коллектор фотоионов 3, а с другой стороны — дефлектор 4, который служил для увеличения и выравнивания напряжённости электрического поля. В экспериментах использовались два варианта рабочего объёма: 1-й вариант — с применением лазерных лучей диаметром 20 мм (жирные линии), 2-й вариант — лучей диаметром 30 мм (тонкие линии) и увеличенными шириной рабочего объёма и расстоянием до тигля. Оптическая многопроходная система обеспечивала многократный проход лазерного луча в рабочем объёме для обеспечения эффективного облучения испарённых атомов в секторе коллимации. Скорость испарения контролировалась с помощью кварцевого датчика, данные которого калибровались по результатам анализа напыления с пластин 5, расположенных над рабочим объёмом. Угловое распределение потока, полученное по анализу напыления на пластине 5, представлено на рис. 14б.

Фотоионизация осуществлялась по каналу $8,5 \rightarrow 9,5 \rightarrow 8,5 \rightarrow 7,5$. Настройка длин волн на изотоп ^{176}Lu контролировалась в масс-спектрометрической установке, куда направлялась небольшая часть лазерного луча. Мощности подбирались таким образом, чтобы интенсивности лазерного излучения всех трёх ступеней в разделительной ячейке и в области взаимодействия в масс-спектрометре совпадали. Концентрация фотоионов ^{176}Lu в масс-спектрометре, усреднённая по наработке (длительность 3–4 ч), составила 97 %.

Таблица 12. Показатели производительности установки

Диаметр лучей, мм	p , мг ч ⁻¹	C_p	f , мг ч ⁻¹	C_f	K_{extr}	C_w^{max}	$K_{\text{extr}}^{\text{max}}$
20	3,5	0,61	4100	0,0259	0,020	0,0233	0,10
30	3,8	0,68	4600	0,0259	0,022	0,0228	0,12

Таблица 13. Поток нейтральных атомов на коллектор

Диаметр лучей, мм	$C_{\text{photo}}^{\text{min}}$	$C_{\text{photo}}^{\text{max}}$	$(I_{\text{ion}}/D)^{\text{max}}$	$(I_{\text{ion}}/D)^{\text{min}}$	$I_{\text{ion}}^{\text{min}}$, мг ч ⁻¹	$I_{\text{ion}}^{\text{max}}$, мг ч ⁻¹	D^{min} , мг ч ⁻¹	D^{max} , мг ч ⁻¹
20	0,68	0,97	8,3	1,6	2,2	3,1	0,37	1,3
30	0,72	0,97	16,4	2,3	2,7	3,7	0,22	1,2

Суммарная производительность составила $p = 3,5$ мг ч⁻¹ при концентрации ^{176}Lu $C_p = 61$ % в первом варианте и $p = 3,9$ мг ч⁻¹ при концентрации ^{176}Lu $C_p = 68$ % во втором варианте (табл. 12). Поток питания f по анализу контрольных пластин 5 составил 4,1 и 4,6 г ч⁻¹ в первом и втором вариантах соответственно, что даёт возможность определить степень извлечения целевого изотопа K_{extr} , которая составляет около 2 %. Вместе с тем изотопный анализ пластин 5 в узкой области над центрами лазерных лучей даёт концентрацию ^{176}Lu в отвале $C_w = 2,33$ % и $C_w = 2,28$ % в первом и втором вариантах (природная концентрация 2,59 %), что соответствует степени извлечения 10 % и 12 % (см. табл. 12). Столь значительная разница объясняется тем, что вероятность облучения остаётся высокой для атомов, проходящих в области центра лучей. Для атомов, попадающих между окружностями пятен лучей, вероятность облучения снижается. Кроме того, к снижению коэффициента извлечения приводит распыление ранее наработанного продукта на коллекторе вследствие бомбардировки фотоионами с энергией экстрагирующего напряжения 1–3 кВ, что подтверждается наличием небольшого обогащения по изотопу ^{176}Lu ($\sim 2,7$ %) на пластине 5 в области напротив коллектора. Снижение степени извлечения в разделительной ячейке до 10–12 % по сравнению с достигнутой в экспериментах на узком пучке (17 ± 3) % объясняется влиянием эффекта Доплера, когда частота лазерного излучения для атома, летящего под углом к вертикали, смещается и выходит из резонанса.

Концентрация ^{176}Lu в различных местах коллектора составляла от 37,3 % на поверхностной части до 72 % в глубине, что свидетельствует о заметном потоке нейтральных атомов на коллектор вследствие рассеяния в рабочем объёме и на элементах конструкции. Для определения фактических значений потока нейтральных атомов требуется информация об изотопном составе фотоионов в рабочем объёме, который может отличаться от измеренного в масс-спектрометре за счёт эффекта Доплера с учётом того, что угол движения атомов вдоль лазерного луча может достигать $22,5^\circ$ от вертикали, в то время как в масс-спектрометре этот угол ограничен величиной $1,5^\circ$. В работе [46] изотопный состав фотоионов неодима определялся с использованием данных для ряда чётных нецелевых изотопов, каждый из которых имеет одну обособленную линию поглощения. В случае лютеция каждый изотоп имеет выраженную сверхтонкую структуру и такое определение невозможно. В таблице 13 представлены максимальные и минимальные значения потока нейтральных атомов D и потока фото-

ионов $I_{\text{ион}}$, определённые исходя из того, что концентрация фотоионов ^{176}Lu в рабочем объёме C_{photo} не может быть выше, чем в масс-спектрометре (97 %), и ниже, чем максимальная концентрация ^{176}Lu на коллекторе продукта (68 % для первого варианта и 72 % для второго).

Результаты показывают, что во втором варианте рабочего объёма с диаметрами лазерных лучей 30 мм коэффициент извлечения оказывается несколько выше. Это, возможно, связано с более высокой однородностью лазерного пятна и более высоким качеством сведения лучей трёх ступеней фотоионизации с различными длинами волн. Поток нейтральных атомов на коллектор во втором варианте оказывается заметно ниже в связи с тем, что в данном случае размер рабочего объёма больше, а в сочетании с примерно одинаковым потоком питания это приводит к снижению рассеяния атомов в рабочем объёме вследствие уменьшения их плотности.

Второй вариант с диаметром лучей 30 мм оказывается предпочтительным при масштабировании производства за счёт увеличения протяжённости рабочего объёма вдоль лазерного луча. Недостатком второго варианта является то, что для его осуществления требуется мощность лазерного излучения, в 2,3 раза большая, чем для первого варианта.

9. Заключение

Для решения задачи получения медицинского радионуклида ^{177}Lu методом лазерного фотоионизационного разделения изотопов с использованием перестраиваемых лазеров на красителях, накачиваемых лазерами на парах меди, найдена трёхступенчатая схема фотоионизации лютеция. Для всех уровней схемы исследована сверхтонкая структура уровней изотопов ^{175}Lu , ^{176}Lu , ^{177}Lu и изомера $^{177\text{m}}\text{Lu}$, имеющих значение для решения поставленной задачи. Несмотря на небольшие изотопические сдвиги, для каждого изотопа и изомера имеются отдельные компоненты СТС, которые позволяют добиться высокой селективности фотоионизации. Найденная схема позволяет осуществлять следующие процессы:

- 1) селективную фотоионизацию изотопа ^{176}Lu для последующего использования для получения радионуклида ^{177}Lu прямым путём;
- 2) селективную фотоионизацию ^{177}Lu для выделения радионуклида из облучённого материала;
- 3) селективную фотоионизацию изомера $^{177\text{m}}\text{Lu}$ для создания внутрибольничного автономного генератора радионуклида ^{177}Lu .

Схема фотоионизации обладает большим сечением фотоионизации ($\sim 10^{-14} \text{ см}^2$), что позволяет использовать лазеры невысокой мощности ($\sim 10 \text{ Вт}$) и достигать значительных степеней извлечения целевого изотопа (изомера) за счёт фотоионизации (10 % – 17 %).

Исследование выполнено за счёт гранта Российского научного фонда (проект № 17-13-01180) в части выделения радиоактивных изотопов лютеция и гранта Российского фонда фундаментальных исследований (проект № 20-21-00019) в части анализа работы разделительной ячейки.

Список литературы

1. NuDat 3.0. National Nuclear Data Center. Brookhaven National Laboratory, <https://www.nndc.bnl.gov/nudat2/>
2. Toporov Yu G et al., Report on the 1st Research Coordination Meeting on "Development of Therapeutic Radiopharmaceuticals Based on ^{177}Lu for Radionuclide Therapy", 4–8 December 2006, IAEA Headquarters, Vienna, Austria (Vienna: IAEA, 2006) p. 152
3. Banerjee S, Pillai M R A, Knapp F F *Chem. Rev.* **115** 2934 (2015)
4. Pillai M R A et al. *Appl. Radiat. Isotop.* **59** 109 (2003)
5. Park H et al. *J. Nucl. Sci. Technol. Suppl.* **45** (sup6) 111 (2008)
6. Bhardwaj R et al. *Sci. Rep.* **7** 44242 (2017)
7. Андреев Б М и др. *Изотопы: свойства, получение, применение* Т. 1 (Под ред. В Ю Баранова) (М.: Физматлит, 2005) с. 357
8. Летохов В С *УФН* **148** 123 (1986); Letokhov V S *Sov. Phys. Usp.* **29** 70 (1986)
9. Карлов Н В и др. *УФН* **127** 593 (1979); Karlov N V et al. *Sov. Phys. Usp.* **22** 220 (1979)
10. Летохов В С, Мур С Б *Квантовая электроника* **3** 248 (1976); Letokhov V S, Moore C B *Sov. J. Quantum Electron.* **6** 129 (1976)
11. Ткачев А Н, Яковленко С И *Квантовая электроника* **23** 860 (1996); Tkachov A N, Yakovlenko S I *Quantum Electron.* **26** 839 (1996)
12. Дьячков А Б и др. *Квантовая электроника* **42** 953 (2012); D'yachkov A B et al. *Quantum Electron.* **42** 953 (2012)
13. D'yachkov A B et al. *Appl. Phys. B* **121** 425 (2015)
14. Henkelmann R, Hey A, Buck O, in *Workshop "Physics for Health in Europe"* (Geneva: CERN, 2010)
15. Андреев О И и др. *Квантовая электроника* **36** 84 (2006); Andreev O I et al. *Quantum Electron.* **36** 84 (2006)
16. Gadelshin V et al. *Hiperfine Interact.* **238** 28 (2017)
17. Gadelshin V et al. *Radiochim. Acta* **107** 653 (2019)
18. Fedosseev V N, Kudryavtsev Yu, Mishin V I *Phys. Scr.* **85** 058104 (2012)
19. Wendt K et al. *Fresenius J. Anal. Chem.* **364** 471 (1999)
20. Littman M G *Appl. Opt.* **23** 4465 (1984)
21. Grigoriev I S et al. *Proc. SPIE* **5121** 411 (2003)
22. Дьячков А Б и др. *Приборы и техника эксперимента* (4) 81 (2018); D'yachkov A B et al. *Instrum. Exp. Tech.* **61** 548 (2018)
23. Ralchenko Y, Kramida A E, Reader J "NIST ASD Team NIST Atomic Spectra Database (Version 5)", <https://www.nist.gov/pml/atomic-spectra-database>
24. Meggers W F, Corliss C H, Scribner B F *Tables of Spectral-Line Intensities Arranged by Elements* (NBS Monograph 145, Pt. 1) (Washington, DC: National Bureau of Standards, 1975)
25. Smith P L et al. "Atomic spectral line database from CD-ROM 23 of R. L. Kurucz (2017)", <https://www.cfa.harvard.edu/amp/ampdata/kurucz23/sekur.html>
26. Suryanarayana M V *J. Opt. Soc. Am. B* **38** 353 (2021)
27. Suryanarayana M V, Sankari M *Sci. Rep.* **11** 18292 (2021)
28. Suryanarayana M V, Sankari M *J. Opt. Soc. Am. B* **38** 3331 (2021)
29. Rath A D, Biswal D, Rundu S J *Quant. Spectrosc. Radiat. Transf.* **270** 107696 (2021)
30. Woodgate G K *Elementary Atomic Structure* (Oxford: Oxford Univ. Press, 1989)
31. Дьячков А Б и др. *Оптика и спектроскопия* **126** 103 (2019); D'yachkov A B et al. *Opt. Spectrosc.* **125** 839 (2018)
32. Дьячков А Б и др. *Оптика и спектроскопия* **128** 10 (2020); D'yachkov A B et al. *Opt. Spectrosc.* **128** 6 (2020)
33. Nunnemann A, Zimmermann D, Zimmermann P Z. *Phys. A* **290** 123 (1979)
34. Zimmermann D et al. *Z. Phys. A* **295** 307 (1980)
35. Georg U et al. *Eur. Phys. J. A* **3** 225 (1998)
36. Petersen F R, Shugart H A *Phys. Rev.* **126** 252 (1962)
37. Brenner T et al. *Nucl. Phys. A* **440** 407 (1985)
38. Heilig K, Steudel A *Atom. Data Nucl. Data Tabl.* **14** 613 (1974)
39. Witte S et al. *Eur. Phys. J. D* **20** 159 (2002)
40. Jin W G et al. *Phys. Rev. A* **49** 762 (1994)
41. Persson J R *Atom. Data Nucl. Data Tabl.* **99** 62 (2013)
42. Fedchak J A et al. *Astrophys. J.* **542** 1109 (2000)
43. Дьячков А Б и др. *Оптика и спектроскопия* **128** 301 (2020); D'yachkov A B et al. *Opt. Spectrosc.* **128** 289 (2020)
44. Axner O et al. *Spectrochim. Acta B* **59** 1 (2004)

45. Дьячков А Б и др. *Квантовая электроника* **48** 1043 (2018); Dyachkov A B et al. *Quantum Electron.* **48** 1043 (2018)
46. Бабичев А П и др. *Квантовая электроника* **35** 879 (2005); Babichev A P et al. *Quantum Electron.* **35** 879 (2005)
47. Агеева И В и др. *Квантовая электроника* **49** 832 (2019); Ageeva I V et al. *Quantum Electron.* **49** 832 (2019)
48. Дьячков А Б и др. *Квантовая электроника* **51** 317 (2021); D'yachkov A B et al. *Quantum Electron.* **51** 317 (2021)
49. Дьячков А Б и др. *Квантовая электроника* **46** 574 (2016); D'yachkov A B et al. *Quantum Electron.* **46** 574 (2016)
50. Kuhnert A, Nunnemann A, Zimmermann D J. *Phys. B* **16** 4299 (1983)

Isotopically selective photoionization for the production of the medical radioisotope ^{177}Lu

A.B. Dyachkov, A.A. Gorkunov, A.V. Labozin, S.M. Mironov, V.A. Firsov, G.O. Tsvetkov^(*), V.Ya. Panchenko

National Research Center Kurchatov Institute,

pl. Akademika Kurchatova 1, 123182 Moscow, Russian Federation

E-mail: ^(*) Tsvetkov_GO@nrcki.ru

We present results on isotopically selective lutetium photoionization using dye lasers pumped by copper vapor lasers as applied to the problem of obtaining the ^{177}Lu radionuclide for medical applications.

Keywords: selective photoionization, laser isotope separation, ^{177}Lu

PACS numbers: **28.60.+s**, **42.62.-b**, **87.56.-v**

Bibliography — 50 references

Uspekhi Fizicheskikh Nauk **193** (5) 554–570 (2023)

DOI: <https://doi.org/10.3367/UFNr.2021.12.039140>

Received 2 November 2021, revised 17 December 2021

Physics – Uspekhi **66** (5) (2023)

DOI: <https://doi.org/10.3367/UFNe.2021.12.039140>