

# Селективная лазерная ионизация радионуклида $^{63}\text{Ni}$

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

*Проведен поиск селективной схемы лазерной ступенчатой ионизации радионуклида  $^{63}\text{Ni}$  излучением лазеров на красителях с накачкой излучением лазеров на парах меди. Найдена трехступенчатая схема с ионизацией через автоионизационное состояние (АИС):  $3d^8 4s^2 3F_4(E=0) \rightarrow 3d^9 4p^1 F_3^o(31030.99 \text{ см}^{-1}) \rightarrow 3d^9 4d^2 [7/2]_4(49322.56 \text{ см}^{-1}) \rightarrow \text{АИС}(67707.61 \text{ см}^{-1})$ , позволяющая при использовании насыщающих интенсивностей излучений получить селективность ионизации  $^{63}\text{Ni}$  свыше 1200.*

**Ключевые слова:** никель, радионуклид  $^{63}\text{Ni}$ , лазерная фотоионизация, автоионизация, селективность.

## 1. Введение

В настоящее время ведутся активные разработки автономных источников энергии на основе бета-вольтаического эффекта с использованием радионуклида  $^{63}\text{Ni}$  (источник  $\beta$ -излучения со средней энергией 0.17 МэВ и периодом полураспада 100 лет) [1–5]. Такие малогабаритные автономные источники электрической энергии ( $\sim 1$ –10 мкВт) со сроком службы более 30 лет могли бы обеспечить многолетнее энергоснабжение микросистем, находящихся в труднодоступных местах. Эти микросистемы применяются на объектах космического базирования, в системах распределенного мониторинга Земли, в датчиках контроля целостности конструкций, встроенных в каркасы зданий или в дорожные покрытия, в кардио- и нейростимуляторах в медицине и т. д.

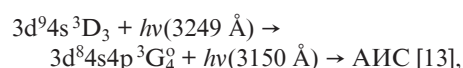
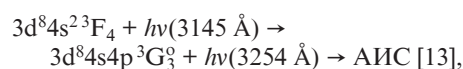
Природный никель состоит из пяти стабильных изотопов –  $^{58}\text{Ni}$ ,  $^{60}\text{Ni}$ ,  $^{61}\text{Ni}$ ,  $^{62}\text{Ni}$  и  $^{64}\text{Ni}$  с распространенностью 68.07%, 26.22%, 1.14%, 3.63% и 0.93% соответственно. Известный способ получения радионуклида  $^{63}\text{Ni}$  представляет собой последовательность трех операций: получение обогащенного по  $^{62}\text{Ni}$  исходного материала с применением центробежного разделения, облучение его в реакторе и конверсия в летучее соединение с последующим обогащением по радиоизотопу  $^{63}\text{Ni}$  [6, 7]. При условии обогащения мишени по  $^{62}\text{Ni}$  до  $\sim 50\%$  содержание  $^{63}\text{Ni}$  в конечном продукте может достигать 50%. Для дальнейшего увеличения концентрации целевого изотопа требуется дополнительное центрифугирование, однако из-за высокой радиоактивности этот процесс становится технически сложным в реализации.

Применение лазерной технологии разделения изотопов в атомном паре (атомный вариант лазерной изотопной сепарации – АВЛИС) может существенно удешевить данный процесс, поскольку основная часть установки –

лазерная система – располагается вне зоны действия радиоактивности.

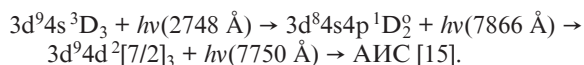
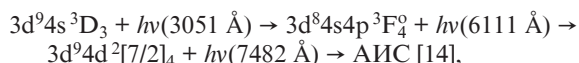
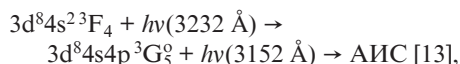
Метод АВЛИС основан на лазерной селективной ступенчатой фотоионизации разреженных паров какого-либо элемента излучением двух и более перестраиваемых по длине волны лазеров [8]. Длина волны спектрально узкого излучения лазеров настраивается на линии поглощения целевого изотопа, происходит ступенчатое возбуждение и фотоионизация атомов. Образованные фотоионы целевого изотопа экстрагируются из потока пара на коллектор с помощью электрического поля, остальные атомы, оставаясь нейтральными, продолжают двигаться по первоначальным траекториям. Эффективность сепарации целевого изотопа методом АВЛИС определяется наличием «больших» изотопических сдвигов в спектре возбуждения данного элемента (превышающих спектральную ширину линии лазерного излучения и доплеровское уширение линии поглощения) и возможностью достижения светового насыщения каждой ступени процесса ионизации (для снижения потерь атомов с промежуточных уровней вследствие спонтанного распада и, следовательно, максимального выхода фотоионов [9]). По уровню световой мощности, спектральным и частотным характеристикам система перестраиваемых лазеров на красителях (ЛК) с накачкой излучением лазеров на парах меди (ЛПМ) является одной из наиболее эффективных для АВЛИС [10]. Исходя из этого, поиск схем ионизации NiI проводился с учетом спектров генерации эффективных лазерных красителей (диапазон длин волн  $\lambda = 530$ –645 нм) и спектров вторых гармоник излучений ЛК.

Из научной литературы известны изотопические сдвиги линий более 30 переходов в спектре дуги NiI [11, 12], однако почти все линии (с  $\lambda = 330$ –391 нм) лежат вне интересующего нас диапазона. В работах [13–15] предложен ряд схем с ионизацией NiI через автоионизационные состояния (АИС):



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

Поступила в редакцию 20 октября 2016 г., после доработки – 31 октября 2016 г.



Получить излучение ЛК, мощность которого достаточна для реализации эффективной ионизации макроколичеств целевого изотопа в спектральном диапазоне предельных переходов, крайне затруднительно.

Настоящая работа посвящена поиску эффективной схемы селективной лазерной ионизации изотопов никеля излучением ЛК с накачкой излучением ЛПМ. В разд.2 описана установка для исследования спектров NiI в атомном паре методом ступенчатой резонансной ионизации. В разд.3 представлены результаты измерения изотопических сдвигов линий ряда переходов с основного и промежуточных уровней для четных изотопов NiI, а также рассмотрена структура первых переходов схемы фотоионизации для  $^{61}\text{Ni}$  и  $^{63}\text{Ni}$ . Проведен поиск нечетных АИС с энергией  $E = 67503\text{--}68013 \text{ см}^{-1}$ , превышающей порог ионизации. На основе полученных результатов выбрана трехступенчатая селективная схема ионизации:  $3d^8 4s^2 {}^3F_4 (E = 0) \rightarrow 3d^9 4p {}^1F_3 (31030.99 \text{ см}^{-1}) \rightarrow 3d^9 4d^2 [7/2]_4 (49322.56 \text{ см}^{-1}) \rightarrow \text{АИС} (67707.61 \text{ см}^{-1})$ , и измерены интенсивности насыщения по всем ступеням возбуждения. В разд.4 приведены результаты селективной ионизации  $^{63}\text{Ni}$ , выполненной по данной схеме.

## 2. Экспериментальная установка

### 2.1. Лазерная система

Лазерная установка, состоящая из ЛК с накачкой излучением ЛПМ и комплекса сепаратора, была разработана и создана в НИЦ «Курчатовский Институт» для исследования лазерного разделения изотопов в атомном паре [16].

ЛПМ (задающий генератор (ЗГ) – усилитель) создан на основе саморазогревных [17, 18] излучателей на парах меди LT-40Cu и тиратронных модуляторов (длины волн 510 и 578 нм, выходная мощность 35–40 Вт, частота следования импульсов 10 кГц, длительность импульсов  $\Delta t_{\text{FWHM}} \approx 20 \text{ нс}$ ). Каждый ЛК состоит из ЗГ и усилителя. Резонаторы ЗГ построены по схеме с дифракционной решеткой, работающей в режиме скользящего падения. Средняя мощность одномодовой генерации на выходе ЗГ составляет 100–200 мВт (спектральная ширина линии излучения  $\Delta\nu_{\text{FWHM}} \approx 100 \text{ МГц}$ ,  $\Delta t_{\text{FWHM}} \approx 15\text{--}20 \text{ нс}$ ). В усилителе ЛК мощность увеличивается до 4–8 Вт. Конструкция резонатора ЗГ позволяет проводить плавное (без переключения мод) сканирование длины волны одномодовой генерации в диапазоне  $\sim 1 \text{ \AA}$ , управляя напряжением на пьезоэлементе узла поворотного зеркала резонатора. Для сканирования в более широком диапазоне (более 100  $\text{\AA}$ ) используется шаговый двигатель. Контроль длины волны излучения ЛК осуществляется прецизионными измерителями LM007 (Laser 2000, GmbH), обеспечивающими абсолютную точность измерений  $\sim 0.0005 \text{ \AA}$ . При необходимости измерители используются в качестве эталона для активной стабилизации длины волны генерации любого ЛК. Более детальную информацию о ЛК можно найти в

работе [19]. На выходе усилителей ЛК пучки телескопируются до диаметра 5–12 мм, коллимируются и направляются в камеру масс-спектрометра. Для пространственного сведения пучков применяются полупрозрачные и/или дихроичные зеркала. Импульсы излучения всех ЛК в едином пучке синхронизованы по времени, однако при необходимости они могут быть разнесены во времени на десятки наносекунд с помощью соответствующих пространственных линий задержки.

Использование эффективных лазерных красителей PM556, PM567, PM597, SR640 и Cresyl Violet обеспечивает рабочий спектральный диапазон лазерной системы 530–645 нм. Для получения перестраиваемого излучения в УФ области спектра излучение ЛК (накачка на  $\lambda = 578 \text{ нм}$ , краситель Cresyl Violet, диапазон длин волн генерации 623–645 нм) преобразовывалось во вторую гармонику ( $\lambda = 312\text{--}323 \text{ нм}$ , средняя мощность до 1 Вт) в нелинейном кристалле  $\beta\text{-BBO}$  (размер  $4 \times 4 \times 5 \text{ мм}$ , углы синхронизма  $\theta = 39^\circ$ ,  $\varphi = 90^\circ$ ).

### 2.2. Камера масс-спектрометра

Для проведения спектроскопических исследований в узких коллимированных атомных пучках, в частности методом резонансной ступенчатой ионизации, используется установка, состоящая из вакуумной камеры с системой откачки, термического испарителя и квадрупольного масс-спектрометра MC-7302. Установленная над испарителем система диафрагм позволяет формировать узкий атомный пучок (ортогонально лазерному пучку) с углом раскрытия  $3^\circ$  (доплеровское уширение линий  $\sim 100 \text{ МГц}$ ). Лазерный пучок пересекает атомный пучок непосредственно в ионизационной камере источника ионов квадрупольного масс-спектрометра. Зона взаимодействия лазерного излучения с атомным паром имеет форму цилиндра длиной 2 мм и диаметром 2 мм (определяется размером диафрагмы, установленной на пути распространения лазерного пучка непосредственно перед зоной взаимодействия). Оси атомного и лазерного пучков и ионно-оптическая ось масс-спектрометра взаимно ортогональны. Регистрация ионов проводится вторично-электронным умножителем. Сбор экспериментальных данных осуществляется в режиме реального времени. Программное обеспечение, реализованное в среде LabVIEW (National Instruments), принимает данные измерителей длин волн, измерителей мощности лазерного излучения, сигналы от вторично-электронного умножителя и с помощью блока сопряжения меняет управляющее напряжение на пьезоэлементе поворотного зеркала резонатора ЛК, перестраивая длину волны генерации. Полученные данные сохраняются, проводится их обработка и оперативная оценка.

В экспериментах со стабильными изотопами NiI для испарения использовался природный металлический никель, в экспериментах с радионуклидом  $^{63}\text{Ni}$  применялась металлическая порошковая смесь природного никеля с радионуклидом из  $^{63}\text{Ni}$ -источника  $\beta$ -излучения (ЗАО «РИТВЕРЦ», Россия).

## 3. Выбор схемы фотоионизации

### 3.1. Первая ступень

Основной уровень NiI  $3d^8 4s^2 {}^3F_4$  (энергия  $E = 0$ ) и нижний метастабильный уровень  $3d^9 4s {}^3D_3$  ( $E = 204.786 \text{ см}^{-1}$ )

использовались в качестве начальных. Их относительная населенность при температуре испарения никеля ~1700 °С составляет 0.41 и 0.27 соответственно. Согласно [20] существует порядка 10 переходов с уровней <sup>3</sup>F<sub>4</sub> и <sup>3</sup>D<sub>3</sub> с длинами волн 280–323 нм. Для исследования были выбраны три перехода, соответствующие различным изменениям электронной конфигурации:

$$3d^8 4s^2 \ ^3F_4 \rightarrow 3d^8 4s 4p \ ^3G_3^o \ (\lambda = 314 \text{ нм}),$$

$$3d^9 4s \ ^3D_3 \rightarrow 3d^8 4s 4p \ ^3G_3^o \ (\lambda = 317 \text{ нм}),$$

$$3d^8 4s^2 \ ^3F_4 \rightarrow 3d^9 4p \ ^1F_3^o \ (\lambda = 322 \text{ нм}).$$

Потенциал ионизации NiI равен 7.64 эВ (61600 см<sup>-1</sup>), что позволяет исследовать структуру первых переходов по двухступенчатой схеме с ионизацией в континуум с помощью одного ЛК. В ходе эксперимента фильтр масс квадрупольного масс-спектрометра настраивался на пропускание фотоионов исследуемого изотопа, проводились сканирование длины волны ЛК и регистрация фотоионного тока. Пример фотоионного сигнала <sup>58</sup>Ni при сканировании длины волны ЛК вблизи длины волны резонансного перехода  $3d^8 4s^2 \ ^3F_4 \rightarrow 3d^9 4p \ ^1F_3^o$  приведен на рис.1. Для более точного определения «центра» каждого перехода экспериментальные точки аппроксимировались контуром Фойгта с использованием программы RAW библиотеки ЦЕРНА [21]. В табл.1 представлены измеренные изотопические сдвиги частот переходов для четных изотопов NiI.

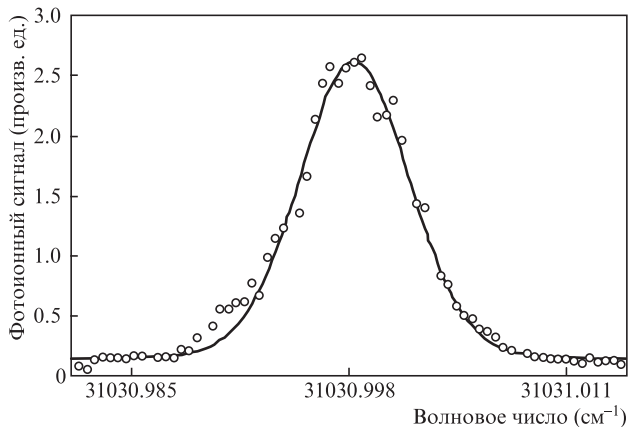


Рис.1. Фотоионный сигнал <sup>58</sup>Ni (точки) в зависимости от волнового числа излучения ЛК первой ступени возбуждения ( $3d^8 4s^2 \ ^3F_4 \rightarrow 3d^9 4p \ ^1F_3^o$ ). Сплошная кривая – контур Фойгта с ширинами (FWHM) лоренцевского ( $\Delta\nu_L$ ) и гауссова ( $\Delta\nu_D$ ) профилей, равными соответственно 25 и 190 МГц.

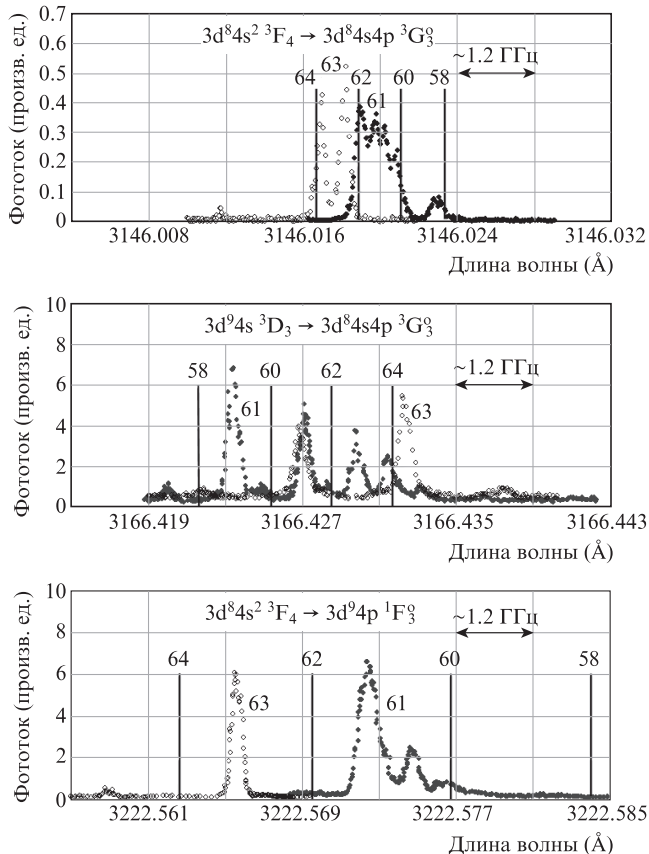


Рис.2. Изотопическая структура первых переходов NiI. Вертикальные линии указывают длины волн переходов четных изотопов NiI, точки – СТС переходов <sup>61</sup>Ni (●) и <sup>63</sup>Ni (○).

Селективность возбуждения, наряду с величинами изотопических сдвигов, определяется сверхтонкой структурой (СТС) перехода для изотопов с ненулевым значением спина ядра *I*. В нашем случае *I* = 3/2 для <sup>61</sup>Ni и 1/2 для <sup>63</sup>Ni. Для выбранных переходов константы сверхтонкого взаимодействия известны только для нижних уровней изотопа <sup>61</sup>Ni [22]. Этого недостаточно для расчета СТС переходов с изменением полного атомного момента  $\Delta F = 0, \pm 1$  между подуровнями сверхтонких мультиплетов с  $F = J + I, J + I - 1, \dots, |J - I|$ , где *J* – полный электронный момент атома. Поэтому СТС трех первых переходов определялась в эксперименте (рис.2).

СТС переходов  $^3F_4 \rightarrow ^3G_3^o$  и  $^3D_3 \rightarrow ^3G_3^o$  оказалась такой (рис.2), что селективная фотоионизация <sup>63</sup>Ni возможна только через слабые линии с  $\lambda = 3146.012$  и  $3166.438$  Å соответственно. СТС перехода  $^3F_4 \rightarrow ^1F_3^o$  изотопа <sup>63</sup>Ni состоит из трех переходов с изменением *F*: 3.5 → 3.5, 4.5 → 3.5,

Табл.1. Изотопические сдвиги частот переходов для четных изотопов NiI (знак « - » означает, что частота перехода для более легкого изотопа больше).

Степень возбуждения	Переход	Длина волны* (Å)	Изотопический сдвиг (ГГц)			
			<sup>58</sup> Ni– <sup>60</sup> Ni	<sup>60</sup> Ni– <sup>62</sup> Ni	<sup>62</sup> Ni– <sup>64</sup> Ni	<sup>58</sup> Ni– <sup>64</sup> Ni
Первая	$3d^8 4s^2 \ ^3F_4 \rightarrow 3d^8 4s 4p \ ^3G_3^o$	3146.0237(3)	0.727(30)	0.728(30)	0.697(30)	2.152(30)
Первая	$3d^9 4s \ ^3D_3 \rightarrow 3d^8 4s 4p \ ^3G_3^o$	3166.4219(3)	-1.077(30)	-0.928(30)	-0.957(30)	-2.962(30)
Первая	$3d^8 4s^2 \ ^3F_4 \rightarrow 3d^9 4p \ ^1F_3^o$	3222.5841(3)	2.080(30)	2.080(30)	1.964(30)	6.124(30)
Вторая	$3d^9 4p \ ^1F_3^o \rightarrow 3d^9 4d \ ^2[7/2]_4$	5464.0140(6)	0.423(15)	0.522(15)	0.504(15)	1.449(15)
Третья	$3d^9 4d \ ^2[7/2]_4 \rightarrow 67707.6 \text{ см}^{-1}$	5442.1623(6)	-1.641(30)	-1.419(30)	-2.055(30)	-5.115(30)

\*Длина волны (в вакууме) соответствует переходам <sup>58</sup>Ni.

3.5 → 2.5. В эксперименте были зафиксированы только две линии на λ = 3222.559 и 3222.566 Å. Вероятно, интенсивный пик фотоионного сигнала <sup>63</sup>Ni на λ = 3222.566 Å образуют два близких по частоте сверхтонких перехода. Частотное расстояние от данного пика до ближайших пиков изотопов <sup>64</sup>Ni и <sup>62</sup>Ni составило 0.75 и 1.21 ГГц соответственно. Таким образом, переход <sup>3</sup>F<sub>4</sub> → <sup>1</sup>F<sub>3</sub> был выбран в качестве перехода первой ступени схемы фотоионизации.

### 3.2. Вторая ступень

Двухступенчатая ионизация атомов никеля может быть проведена через ряд известных четных АИС [13], однако трехступенчатый вариант (один УФ квант и два кванта видимого диапазона) потенциально предпочтительней. Во-первых, селективность двухступенчатой ионизации ниже из-за наличия канала неселективной двухфотонной нерезонансной ионизации. Во-вторых, мощность УФ излучения на выходе нелинейного кристалла β-BBO из-за температурной зависимости угла фазового синхронизма ограничена величиной в несколько ватт [23, 24], что может быть недостаточно для достижения эффективной ионизации. Переход с уровня 3d<sup>9</sup>4p<sup>1</sup>F<sub>3</sub> возможен на четный уровень со значением полного электронного момента J, равным 2, 3 или 4. В спектральном диапазоне эффективной генерации ЛК согласно [20] переходы возможны на следующие уровни:

$$3d^9 4d^2 [7/2]_4 (E = 49332.593 \text{ см}^{-1}, \lambda = 546 \text{ нм}),$$

$$3d^9 4d^2 [7/2]_3 (E = 49313.814 \text{ см}^{-1}, \lambda = 547 \text{ нм}),$$

$$3d^9 4d^2 [3/2]_2 (E = 49159.030 \text{ см}^{-1}, \lambda = 551 \text{ нм}),$$

$$3d^8 4s 5s^5 F_4 (E = 49085.982 \text{ см}^{-1}, \lambda = 554 \text{ нм}).$$

Для определения длин волн и изотопических сдвигов длина волны излучения ЛК второй ступени (накачка на λ = 510 нм, краситель РМ556, диапазон длин волн генерации 530–550 нм, плотность средней мощности 50 мВт/см<sup>2</sup>) сканировалась вблизи длины волны резонансного перехода, одновременно ЛК первой ступени (80 мВт/см<sup>2</sup>) был стабилизирован на длине волны 3222.5841 Å. Дополнительный ЛК (накачка на λ = 510 нм, краситель РМ556, длина волны излучения 535 нм, плотность средней мощности 1 Вт/см<sup>2</sup>) использовался для увеличения вероятности ионизации в континуум со второго уровня.

Поиск вторых переходов мы ограничили исследованием перехода 3d<sup>9</sup>4p<sup>1</sup>F<sub>3</sub> → 3d<sup>9</sup>4d<sup>2</sup>[7/2]<sub>4</sub>, поскольку, с одной стороны, он имеет заметную изотопию (табл.1), а с другой стороны, с его верхнего уровня 3d<sup>9</sup>4d<sup>2</sup>[7/2]<sub>4</sub> был обнаружен очень интенсивный автоионизационный переход (см. ниже).

### 3.3. Третья ступень (автоионизация)

При использовании ЛК с накачкой излучением ЛПМ четвертый уровень (АИС) в схеме фотоионизации должен иметь энергию в диапазоне 64663–68189 см<sup>-1</sup> и быть нечетным со значением полного электронного момента J = 1–5 в зависимости от третьего (предыонизационного) уровня. Согласно [14] в диапазоне E = 62577–67157 см<sup>-1</sup> обнаружено только одно нечетное АИС с энергией 62694 см<sup>-1</sup>

и J = 3. Наша лазерная система позволила несколько расширить диапазон поиска. Сканирование длины волны излучения ЛК третьей ступени (возбуждение с уровня 3d<sup>9</sup>4d<sup>2</sup>[7/2]<sub>4</sub>, E = 49332.593 см<sup>-1</sup>) проводилось в диапазоне длин волн генерации красителя РМ556: λ = 535–550 нм (E = 67503–68013 см<sup>-1</sup>). В ходе сканирования были обнаружены семь АИС (табл.2). Фотоионный сигнал при ионизации через наиболее интенсивный автоионизационный переход (E<sub>АИС</sub> = 67707.611 см<sup>-1</sup>) (рис.3) превысил сигнал ионизации в континуум в 630 раз. Для определения полного электронного момента J данного АИС экспериментально исследовалась возможность ионизации через это состояние с использованием другого предыонизационного уровня с E = 67707.611 см<sup>-1</sup> из конфигурации 3d<sup>9</sup>4d<sup>2</sup>[7/2]<sub>3</sub> с J = 3. В эксперименте автоионизации обнаружено не было, поэтому можно предположить, что полный электронный момент АИС с E<sub>АИС</sub> = 67707.611 см<sup>-1</sup> равен 5.

Важнейшей характеристикой каждой схемы фотоионизации является интенсивность лазерного излучения, необходимая на каждой ступени для достижения насыщения переходов. Это позволяет оценить эффективность фотоионизации при заданных лазерных мощностях, а также затраты, необходимые для достижения требуемой производительности процесса разделения. Для определения этих характеристик экспериментально исследовались зависимости фотоионного сигнала от плотности средней мощности лазерного излучения. На рис.4 и 5 приведены такие зависимости для всех ступеней возбуждения. Уровни насыщения для первой, второй и третьей ступе-

Табл.2. АИС <sup>58</sup>Ni, возбуждаемые при переходах с уровня 3d<sup>9</sup>4d<sup>2</sup>[7/2]<sub>4</sub> (E = 49332.561 см<sup>-1</sup>).

Длина волны (в вакууме) перехода (Å)	Ширина (FWHM) линии перехода (ГГц)	Энергия АИС (см <sup>-1</sup> )	K
5460.293	18	67646.598	3.2
5456.925	0.4	67657.903	5.5
5452.601	0.6	67672.431	11
<b>5442.162</b>	<b>1.1</b>	<b>67707.611</b>	<b>630</b>
5435.736	30	67729.336	4.5
5428.130	0.2	67755.112	11.5
5424.010	12.3	67769.105	5.7

Примечания: K – отношение тока фотоионизации через АИС к току фотоионизации в континуум при плотности средней мощности излучения 1 Вт/см<sup>2</sup>.

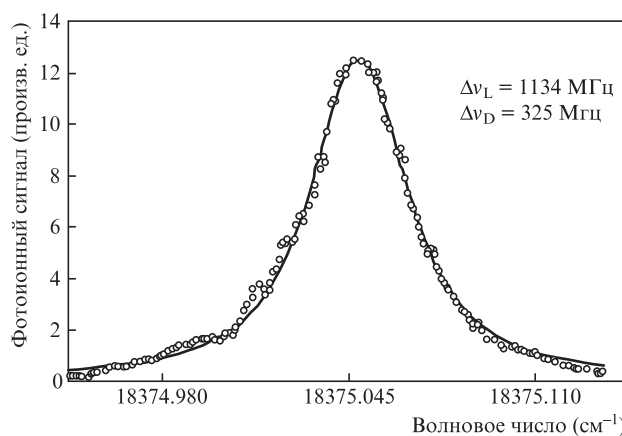


Рис.3. Фотоионный сигнал <sup>58</sup>Ni при ионизации через АИС с E<sub>АИС</sub> = 67707.611 см<sup>-1</sup> в зависимости от волнового числа излучения ЛК третьей ступени (возбуждение с уровня 3d<sup>9</sup>4d<sup>2</sup>[7/2]<sub>4</sub>, E = 49332.561 см<sup>-1</sup>).

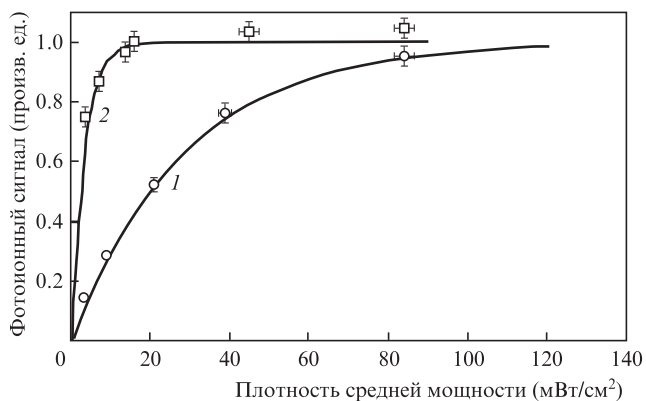


Рис.4. Зависимости фотоионного сигнала от плотностей средней мощности ЛК первой ступени (плотности средней мощности ЛК второй и третьей ступеней 80 мВт/см<sup>2</sup> и 1 Вт/см<sup>2</sup> соответственно) (1) и ЛК второй ступени (плотности средней мощности ЛК первой и третьей ступеней 80 мВт/см<sup>2</sup> и 1 Вт/см<sup>2</sup> соответственно) (2).

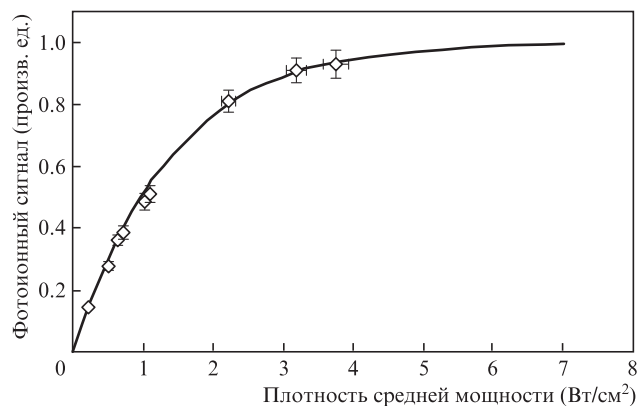


Рис.5. Зависимость фотоионного сигнала от плотности средней мощности ЛК третьей ступени (плотность средней мощности ЛК первой и второй ступеней: 80 и 15 мВт/см<sup>2</sup> соответственно).

ней составили 80, 15 и 4000 мВт/см<sup>2</sup> соответственно. Окончательная схема трехступенчатой ионизации NiI представлена на рис.6.

#### 4. Селективная фотоионизация

Настройка длин волн излучений лазеров для селективной фотоионизации радионуклида осуществлялась в несколько этапов. В начале фильтр масс квадрупольного масс-спектрометра настраивался на пропускание ионов с массой 63. ЛК первой ступени настраивался на длину волны наиболее интенсивной компоненты спектра <sup>63</sup>Ni ( $\lambda_1 = 3222.5656 \text{ \AA}$ ) и переводился в режим автоматической стабилизации длины волны. Затем длины волн ЛК второй и третьей ступеней последовательно настраивались на максимальный фототок радионуклида <sup>63</sup>Ni ( $\lambda_2 = 5464.0058 \text{ \AA}$ ,  $\lambda_3 = 5442.1953 \text{ \AA}$ ) и также стабилизировались. Для определения селективности фотоионизации <sup>63</sup>Ni масс-спектрометр сканировался в диапазоне массовых чисел 57–65. Пример масс-спектра фотоионного сигнала представлен на рис.7. Плотности средней мощности ЛК первой, второй и третьей ступеней в эксперименте составляли 80, 15 и 1700 мВт/см<sup>2</sup> соответственно и были близки к уровням насыщения (рис.4 и 5).

Концентрация ионов <sup>63</sup>Ni в фотоионном токе (при начальной концентрации радионуклида менее 1%) состави-

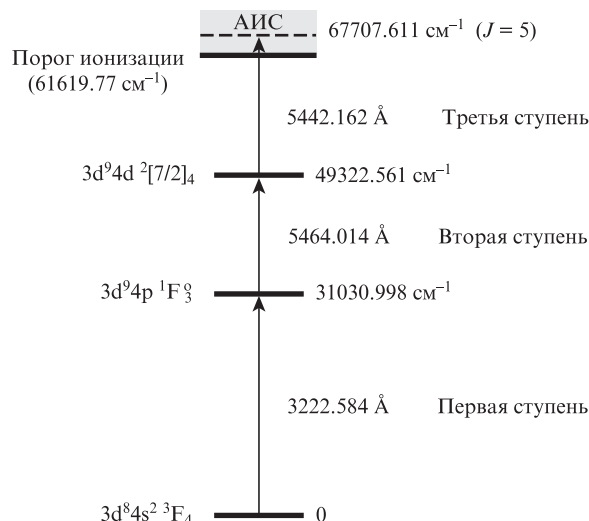


Рис.6. Трехступенчатая схема ионизации NiI через АИС. Энергии уровней и длины волн (в вакууме) соответствуют <sup>58</sup>Ni.

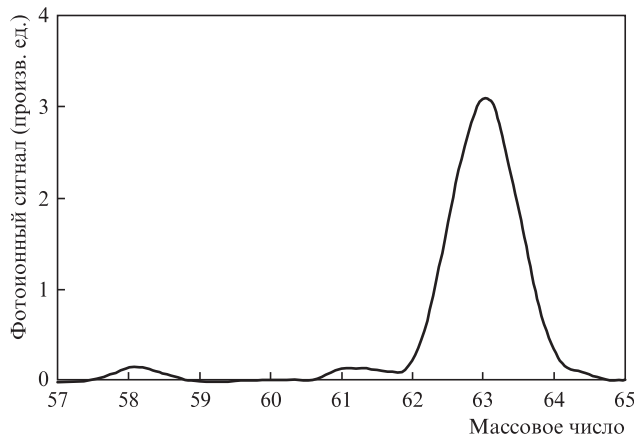


Рис.7. Масс-спектр фотоионов. Начальная изотопная концентрация <sup>63</sup>Ni составляла менее 1%, плотности средней мощности ЛК первой, второй и третьей ступеней равны 80, 15 и 1700 мВт/см<sup>2</sup> соответственно.

ла 93%. В табл.3 приведены результаты экспериментов по селективной ионизации различных мало распространенных изотопов NiI. Видно, что селективность фотоионизации <sup>61</sup>Ni оказывается ниже, чем, например, <sup>63</sup>Ni. Это, по-видимому, связано с тем, что линии <sup>61</sup>Ni в спектре соседствуют с линиями четных изотопов с относительно высокой концентрацией – <sup>60</sup>Ni (26.22%) и <sup>62</sup>Ni (3.63%). Кроме того, при настройке длин волн лазерного излучения первой ступени на компоненту СТС <sup>63</sup>Ni в процесс

Табл.3. Селективность S лазерной ионизации изотопов NiI при насыщающих интенсивностях излучений по схеме 3d<sup>8</sup>4s<sup>2</sup>³F<sub>4</sub> → 3d<sup>9</sup>4p ¹F<sub>3</sub> → 3d<sup>9</sup>4d ²[7/2]<sub>4</sub> → АИС (67707.611 см<sup>-1</sup>).

Изотоп	C <sub>f</sub>	C <sub>p</sub>	S
<sup>61</sup> Ni	0.011	0.75	265
<sup>62</sup> Ni	0.036	>0.98	>1300
<sup>63</sup> Ni	<0.01	0.93	>1200
<sup>64</sup> Ni	0.009	>0.98	>5000

Примечание:  $S = C_p(1 - C_f) / [C_f(1 - C_p)]$ , где C<sub>f</sub> – исходная концентрация целевого изотопа, а C<sub>p</sub> – концентрация фотоионов целевого изотопа.

фотовозбуждения и последующей фотоионизации вовлекается бóльшая доля атомов вследствие того, что основное состояние  $^{63}\text{Ni}$  расщеплено всего на два подуровня, в то время как атомы  $^{61}\text{Ni}$  в основном состоянии распределены по четырем подуровням.

## 5. Заключение

Эксперименты по спектроскопии атомарного никеля, выполненные методом резонансной ступенчатой ионизации, позволили найти эффективную схему селективной лазерной ионизации изотопов NiI излучением ЛК с накачкой излучением ЛПМ:  $3d^8 4s^2 3F_4 (E = 0) \rightarrow 3d^9 4p^1 F_3^o (31030.99 \text{ см}^{-1}) \rightarrow 3d^9 4d^2 [7/2]_4 (49322.56 \text{ см}^{-1}) \rightarrow \text{АИС} (67707.61 \text{ см}^{-1})$ . Полученная в экспериментах селективность выделения радионуклида  $^{63}\text{Ni}$  при относительно низких требованиях к мощностным выходным характеристикам лазерной системы позволяет рассматривать метод лазерного разделения изотопов в атомном паре (АВЛИС-технология) как весьма перспективный для получения макроколичеств радионуклида  $^{63}\text{Ni}$  – основы для создания долгоживущих автономных источников электроэнергии.

Работа поддержана грантом РФФИ №16-29-09459-офи\_м.

1. Нагорнов Ю.С. *Современные аспекты применения бетавольтаического эффекта* (Ульяновск, 2012).

2. Пустовалов А.А., Гусев В.В., Заддэ В.В., Петренко Н.С., Тихомиров А.В., Цветков Л.А. *Атомная энергия*, **103**, 353 (2007).
3. Пчелинцева Е.С. *Канд. дис.* (Ульяновск, УдГУ, 2011).
4. Резнев А.А., Пустовалов А.А. и др. *Нано- и микросистемная техника*, **3**, 14 (2009).
5. <http://www.findpatent.ru/patent/245/2452060.html>.
6. Sosnin L.J., Suvorov I.A., Tcheltsov A.N., Rogozev B.I., Gudov V.I. *Nucl. Instrum. Methods Phys. Res., Sect. A*, **334**, 43 (1993).
7. <http://www.findpatent.ru/patent/231/2313149.html>.
8. Амбарцумян Р.В., Калинин В.П., Летохов В.С. и др. *Письма в ЖЭТФ*, **13**, 305 (1971).
9. Летохов В.С., Мишин В.И., Пурецкий А.А. В сб.: *Химия плазмы* (М.: Атомиздат, 1977, т. 4, с. 3).
10. Bass I.L., Bonanno R.E., Hackel R.P., Hammond P.R. *Appl. Opt.*, **33**, 6993 (1992).
11. Schroeder D.J., Mack J.E. *Phys. Rev.*, **121**, 1726 (1961).
12. Steudel A. *Z. Phys. A: At. Nucl.*, **296**, 189 (1980).
13. Lievens P. *Phys. Rev. A*, **54**, 2253 (1996).
14. Jokinen A. *Nucl. Instrum. Methods Phys. Res., Sect. B*, **126**, 95 (1997).
15. Kessler T. *J. Phys. B: At. Mol. Opt. Phys.*, **40**, 4413 (2007).
16. Бабичев А.П. и др. *Квантовая электроника*, **35**, 879 (2005).
17. Исаев А.А., Казарян М.А., Петраш Г.Г. *Письма в ЖЭТФ*, **16**, 40 (1972).
18. Беляев В.П., Зубов В.В., Исаев А.А. и др. *Квантовая электроника*, **12**, 74 (1985).
19. Grigoriev I., Diachkov A., Kuznetsov V., Labosin V., Firsov V. *Proc. SPIE Int. Soc. Opt. Eng.*, **5121**, 411 (2003).
20. <http://grotrian.nsu.ru>.
21. <http://cernlibweb.cern.ch/cernlib>.
22. Childs W.J., Goodman L.S. *Phys. Rev.*, **170**, 136 (1968).
23. Yip Y.K. *Opt. Lett.*, **23**, 1016 (1998).
24. Takahashi M. *Jpn. J. Appl. Phys.*, **49**, 080211 (2010).