

## 镱原子自电离态的共振电离谱\*

张钧尧<sup>1)2)†</sup> 熊静逸<sup>2)</sup> 魏少强<sup>1)2)</sup> 李云飞<sup>1)2)</sup> 卢肖勇<sup>1)2)</sup>

1) (粒子输运与富集技术全国重点实验室, 天津 300180)

2) (核工业理化工程研究院, 天津 300180)

(2023 年 6 月 13 日收到; 2023 年 8 月 18 日收到修改稿)

$^{177}\text{Lu}$  是一种用于成像引导放射性治疗的重要医用同位素, 可通过辐照高丰度  $^{176}\text{Lu}$  或  $^{176}\text{Yb}$  的方式生产, 通过同位素分离手段获取高丰度  $^{176}\text{Lu}$  辐照前体是解决世界范围内  $^{177}\text{Lu}$  供应不足问题的必要途径. 由于镱同位素无法通过离心分离方式生产, 需要发展多步多色光电离方法以获取高丰度  $^{176}\text{Lu}$ , 但镱原子的自电离态能级数据稀缺, 限制了高效光电离路径的构建. 激光共振电离谱是少数具有自电离态研究能力的激光光谱学方法之一, 利用实验室搭建的激光共振电离飞行时间质谱系统, 测量得到激发态  $35274.5\text{ cm}^{-1}$  的能级寿命为  $(31.6 \pm 1.7)\text{ ns}$ ; 由该激发态出发, 利用三色三步光电离方案, 扫描了镱的  $50560\text{--}53450\text{ cm}^{-1}$  能区, 获取了 47 条自电离态能级, 其中 33 条为首次发现, 确定了自电离跃迁的峰宽和相对跃迁强度, 提供了可见光波段内可用于镱原子高效光电离的关键光谱数据. 同时, 为确定自电离态能级的电子组态, 通过 3 条不同  $J$  值激发态的扫描实验, 标识了 21 条能级的角动量, 为确定自其他激发态出发的电偶极跃迁禁戒情况提供了参考依据.

关键词: 自电离态, 共振电离, 镱原子

PACS: 32.80.Zb, 32.70.Jz, 42.55.Mv

DOI: 10.7498/aps.72.20230978

## 1 引言

癌症和心脑血管病等疾病成为威胁人民健康的主要因素, 利用医用放射性同位素实现早期病变组织的快速诊断和微小病变组织的放射性清除, 逐渐成为重要的医学诊疗手段. 近年来, 得益于以  $^{177}\text{Lu}$  标记的奥曲肽 ( $^{177}\text{Lu}$ -DOTATATE) 为代表的放射性核素偶联药物的研发与应用<sup>[1,2]</sup>, 医用同位素需求量呈现爆发式增长, 供给能力显著不足, 因此医用同位素及其辐照前体的高效生产供应途径成为领域研究热点.

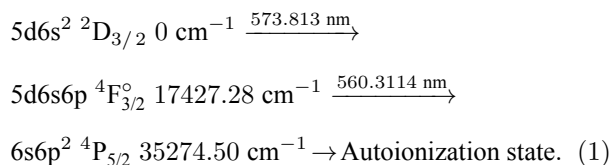
$^{177}\text{Lu}$  是重要的医用同位素<sup>[3]</sup>, 半衰期为 6.65 d, 衰变过程中释放  $\beta^-$  电子和  $\gamma$  光子, 适用于成像引导的放射性治疗, 可用于神经内分泌肿瘤和前列腺癌的靶向治疗, 目前已大量用于新型核药研制工

作.  $^{177}\text{Lu}$  的主要生产途径有两条<sup>[4]</sup>, 分别利用核反应  $^{176}\text{Lu}(n, \gamma)^{177}\text{Lu}$ , 或  $^{176}\text{Yb}(n, \gamma)^{177}\text{Yb}(\beta^-)^{177}\text{Lu}$ . 尽管辐照  $^{176}\text{Yb}$  的途径在获取无载体  $^{177}\text{Lu}$  方面具有显著优势, 但存在热中子俘获截面小 ( $\sigma = 2.85b$ )、提取困难等问题, 因此具有俘获截面大 ( $\sigma = 2090b$ ) 优势的辐照  $^{176}\text{Lu}$  的生产途径能够作为  $^{177}\text{Lu}$  供应链的重要补充. 由于  $^{176}\text{Lu}$  天然丰度仅为 2.59%, 直接辐照天然镱的  $^{177}\text{Lu}$  产额偏小, 因此, 通过同位素分离手段获取高丰度的  $^{176}\text{Lu}$  辐照前体, 是解决世界范围内  $^{177}\text{Lu}$  供应不足问题的必要途径. 由于镱缺乏常温挥发性化合物, 无法通过离心方法实现同位素分离, 电磁分离方法经济性偏低, 因此以 D'yachkov 等<sup>[5]</sup> 所提出的三步三色光电离路径为代表, 通过选择性光电离或光电离后电磁分离方式获取高丰度镱同位素成为研究热点, 已发展了多条不同的光电离路径<sup>[6–9]</sup>. 2021 年, Suryanarayana<sup>[10]</sup>

\* 中国原子能工业有限公司燎原项目资助的课题.

† 通信作者. E-mail: junyao-z18@tsinghua.org.cn

提出了一条新的获取高丰度  $^{176}\text{Lu}$  的三步三色光电离路径, 即:



该路径前两步跃迁处于高效率激光染料波段, 镱同位素的超精细分裂差异达 8 GHz 以上, 能够降低激光线宽要求, 简化激光系统设置, 提高  $^{176}\text{Lu}$  理论产额, 应用优势明显. 然而, 该路径尚无可行的自电离跃迁, 考虑到在激光多步共振电离过程中, 选用自电离态较非共振途径的光电离截面大 2—4 个数量级<sup>[11]</sup>, 因此受限于激发态  $35274.5\ \text{cm}^{-1}$  的自电离跃迁谱线未知, 无法评估该路径的电离效率.

针对镱的光电离过程, 早期研究工作集中于两步两色路径的研究<sup>[12–15]</sup>, 获取了大量偶宇称自电离态和里德伯序列, 但无法用于构建三步光电离路径. 关于镱奇宇称自电离态的研究很少, 李志明等<sup>[16]</sup>提出  $573.8\ \text{nm} \rightarrow 642.7\ \text{nm} \rightarrow 643.7\ \text{nm}$  的三步光电离路径, 所用奇宇称自电离态为  $48522\ \text{cm}^{-1}$ . 2018 年, D'yachkov 等<sup>[17]</sup>采用的奇宇称自电离态为  $53375\ \text{cm}^{-1}$ ,  $J = 1/2$ . Rath 等<sup>[18]</sup>扫描了激发态  $33831.5\ \text{cm}^{-1}$ ,  $J = 3/2$  在  $50650\text{--}51650\ \text{cm}^{-1}$  内的自电离跃迁谱线, 共获得 19 条奇宇称自电离态. 然而, 上述奇宇称自电离态或角动量未知, 由激发态  $35274.5\ \text{cm}^{-1}$  的跃迁可能禁戒, 或远离高

效率激光染料波段. 可见, 镱的奇宇称自电离谱研究仍有大量拓展空间, 亟待进一步获取可用于高效光电离的自电离态能级数据.

自电离态位于原子电离阈以上, 一般只能通过光电流谱或激光共振电离谱方法研究. 激光共振电离质谱结合了激光共振电离谱的高光谱分辨能力与质谱的高同位素分辨能力, 利用多步共振激光将原子泵浦至特定的能级, 实现光电离过程及离子的质谱分析, 可用于研究重元素的复杂能级结构, 特别适用于自电离态的光谱研究工作, 已被广泛应用于镧系、锆系元素的前沿研究工作<sup>[19–23]</sup>. 实验室自主搭建了一套用于原子光谱实验研究的激光共振电离飞行时间质谱系统<sup>[24]</sup>, 可解决重元素自电离态能级等关键光谱数据缺失问题, 为多个研究和应用领域提供基础参数.

本文将介绍基于激发态  $35274.5\ \text{cm}^{-1}$  的自电离谱线研究工作. 通过共振激发将基态原子泵浦到激发态, 电离激光在  $15280\text{--}18180\ \text{cm}^{-1}$  内扫描, 获取了 47 条奇宇称自电离谱线, 其中 33 条为首次发现, 确定了自电离跃迁的峰宽和相对跃迁强度; 首次准确给定了 21 条自电离谱线的角动量  $J$ , 填补了镱奇宇称自电离态能级的研究空白.

## 2 实验装置

研究镱自电离态的激光共振电离飞行时间质谱系统如图 1 所示, 主要包括激光系统和飞行时间质谱系统.

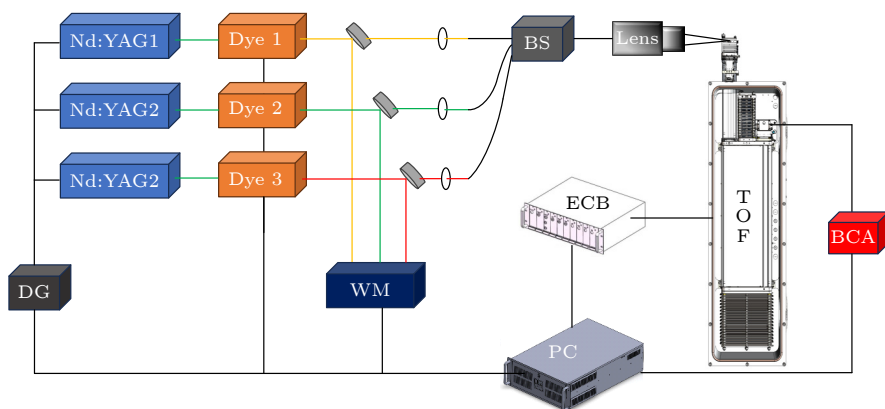


图 1 激光共振电离飞行时间质谱系统. PC 为电脑, DG 为延时发生器, Nd:YAG 为 Nd:YAG 激光器, Dye 为染料激光器, WM 为波长计, BS 为光束合成器, Lens 为镜组, ECB 为电控机箱, TOF 为飞行时间质谱, BCA 为 Boxcar 平均

Fig. 1. Resonance ionization time-of-flight mass spectrometry system. PC is computer, DG is delay generator, Nd:YAG is Nd:YAG laser, Dye is dye laser, WM is wavelength meter, BS is beam synthesis, Lens is lens, ECB is electronic control box, TOF is time of flight mass spectrometry, BCA is box car averager.

激光系统为自主设计研发的固体激光器泵浦的可调谐染料激光器系统. 固体激光器采用波长为 532 nm 的 Nd:YAG 激光器, 重复频率为 10 kHz, 脉宽小于 100 ns, 输出功率可调范围为 20—100 W, 可通过延时信号发生器改变固体激光器的触发时序, 以调整泵浦光之间的时间延迟关系. 可调谐染料激光器均采用 Littman 腔型, 通过 3—4 种激光染料的组合使用, 波长可调范围能够达到 550—660 nm, 设定精度为 0.1 pm, 功率可达 3 W, 线宽在 500 MHz 到数 GHz 范围内可调, 脉宽约为 30 ns. 每束激光的一部分在激光器腔内被光纤采集、传输至波长计, 用于定点波长的闭环控制和固定步长的扫描控制, 扫描步长可调, 通常设置为 5 pm/s. 为实现多束激光的合成传输, 将激光经多合一光纤合束器入纤、传输, 再通过特制激光镜组整形为直径 1 mm 的圆形光斑, 内部能量分布符合平顶光束特征, 聚焦到飞行时间质谱的加速区位置.

飞行时间质谱系统主要包括原子炉和质量分析器两部分, 均安装于真空度优于  $1 \times 10^{-4}$  Pa 的真空腔体内. 原子炉利用电阻加热方式, 使盛放在钽质试管中的 mg 量级固态金属样品蒸发形成原子流, 经直径 2 mm 小孔束流后进入飞行时间质谱的加速区, 原子束空间角小于  $2^\circ$ , 在有效减弱多普勒展宽对谱线分辨的影响的同时, 加热温度在 200—1700  $^\circ\text{C}$  内可调, 从而匹配不同元素的蒸发需求, 实验中镱加热温度约为 1200  $^\circ\text{C}$ . 质量分析器采用多次反射式设计, 原子束流、聚焦光斑和质谱排斥电压方向上两两正交, 进入加速区的原子经多束染料激光共振激发、电离, 在质量分析器中沿“W”形状的飞行路径经过加速区、无场飞行区和两级反射区, 最终到达离子检测器, 信号经采集、传输、处理后在工控机上呈现为谱峰图, 通过采集软件实现激光波长与谱峰信号的匹配. 由于该系统仅搭配可见光波段的激光多步共振离子源使用, 通常跃迁光子总能量不超过 6 eV, 单光子能量低于 0.5 mJ, 因而无背景气体谱峰或其他低电荷态离子的干扰峰. 在自电离态扫描过程中, 当扫描激光的能量满足  $hc/\lambda_3 = E_3 - E_2$  时, 布居在高激发态上的原子被大量泵浦到自电离态上, 在极短时间内电离, 在质谱谱图上可观察到高强度谱峰, 从而获取跃迁谱线的强度-波长信息, 而当激光能量与能级跃迁波长不能匹配时, 离子信号仅为百 mV 本底水平, 系统典型信噪比超过 1000. 该飞行时间质谱利用三次

反射过程大大延长了离子的飞行时间, 质量分辨率可达 10000 (FWHM).

### 3 实验结果

扫描自电离态谱线所用的多步多色光电离路径如图 2 所示, 利用两台可调谐染料激光器, 将布居于基态  $0 \text{ cm}^{-1}$  上的原子共振激发, 泵浦至激发态  $35274.5 \text{ cm}^{-1}$ . 对镱元素的天然同位素  $^{175}\text{Lu}$  和  $^{176}\text{Lu}$  来说, 同一自电离态仅能级位置存在微小差异, 且因天然镱中  $^{175}\text{Lu}$  丰度可达 97.41%,  $^{176}\text{Lu}$  仅占 2.57%, 因此在激光共振电离质谱实验中直接观察  $^{175}\text{Lu}$  的离子信号, 既能保证获取的自电离跃迁适用于  $^{176}\text{Lu}$  的高效光电离, 又可获取高信噪比谱峰, 因此以质谱采集到的  $^{175}\text{Lu}$  离子信号强度来判定自电离跃迁. 考虑到激发态  $35274.5 \text{ cm}^{-1}$  存在较大的超精细结构分裂, 染料激光器需要在理论波长附近 20 pm 内小范围扫描, 以确定使  $^{175}\text{Lu}$  采集信号最大的最优波长. 同时, 镱原子电离阈仅为  $43762.50 \text{ cm}^{-1}$ , 自基态出发, 利用“ $\lambda_1 + \lambda_2 + \lambda_3$ ”的双色三步路径即可实现镱原子的光电离, 对三色三步路径形成干扰, 实验中  $\lambda_1$  和  $\lambda_2$  功率均为 100 mW, 从而减小非共振电离背景信号, 增大自电离谱峰信噪比.

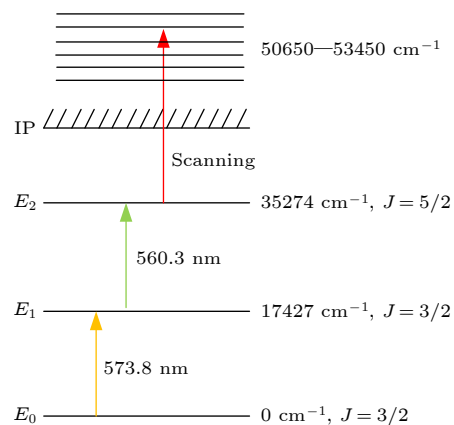


图 2 多步多色光电离路径示意图

Fig. 2. Schematic representation of the multi-step multi-color photoionization path.

同时, 为避免诸如“ $\lambda_2 + \lambda_1 + \lambda_3$ ”、“ $\lambda_3 + \lambda_1 + \lambda_2$ ”等可能发生的多步光电离路径干扰能级判读, 三步可调谐染料激光之间需要设置延时. 由于低激发态  $17427.3 \text{ cm}^{-1}$  的能级寿命为 554 ns<sup>[25]</sup>,  $\lambda_2 - \lambda_1$  的延时设置为 30 ns, 避免发生“ $\lambda_2 + \lambda_1$ ”类型的干扰跃迁. 激发态  $35274.5 \text{ cm}^{-1}$  的能级寿命尚无文

献报道. 为确定扫描过程延时设置, 利用时间延迟光电离方法, 设置多组不同的激发光 ( $\lambda_2$ ) 和电离光 ( $\lambda_3$ ) 之间的延时, 记录对应的  $^{175}\text{Lu}$  质谱采集信号, 完成了该激发态的寿命测量. 能级寿命的拟合曲线为

$$y = ae^{-\frac{x}{\tau}}, \quad (2)$$

其中  $\tau$  为能级寿命. 采用最小二乘法拟合, 结果如图 3 所示. 可见, 激发态  $35274.5 \text{ cm}^{-1}$  的能级寿命为  $(31.6 \pm 1.7) \text{ ns}$ , 可将  $\lambda_3 - \lambda_2$  的延时设置为  $30 \text{ ns}$ , 以避免发生“ $\lambda_3 + \lambda_1$ ”等类型的干扰跃迁.

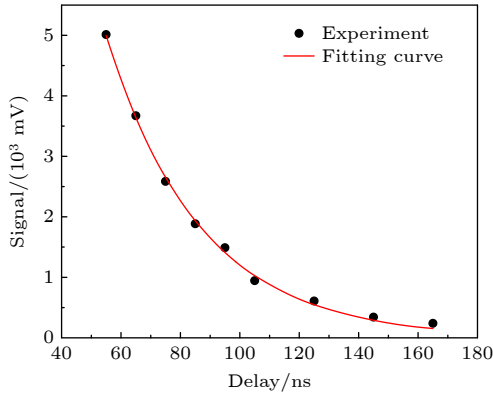


图 3 激发态  $35274.5 \text{ cm}^{-1}$  能级寿命曲线  
Fig. 3. Curve of lifetime of  $35274.5 \text{ cm}^{-1}$  excited state.

自电离态扫描获取的典型谱图如图 4 所示, 在  $641.5\text{--}649 \text{ nm}$  内能够观察到 6 个明显的谱峰. 为排除可能存在的“ $\lambda_1 + \lambda_3$ ”, “ $\lambda_2 + \lambda_3$ ”形式的干扰峰, 分别遮挡  $\lambda_2$  和  $\lambda_1$  重扫该波段, 能够观察到 2 个明显的干扰峰①和⑦. 根据扫描激光波长可确定干扰峰的能级位置, 峰①对应激发态  $6s6p^2 4P_{1/2} 32986.62 \text{ cm}^{-1}$ , 峰⑦对应李志明等<sup>[16]</sup>报道的自电离态  $48522 \text{ cm}^{-1}$ , 峰②—⑥均为自电离态能级, 其中峰③表现出明显的 Fano 峰特征. 为得到峰中心位置和半高宽, 对所有的自电离态峰数据采用 Fano 拟合<sup>[26]</sup>:

$$I = I_0 \frac{\varepsilon + q}{\varepsilon^2 + 1} + I_1, \quad (3)$$

其中  $\varepsilon = 2(E - E_0)/\Gamma$ ,  $E_0$  为峰中心位置,  $\Gamma$  为峰半高宽,  $I_1$  为非共振电离产生的本底信号,  $I_0$  为拟合参数,  $q$  为 Fano 参数. 当峰表现为典型的对称峰形时 (如峰②, ⑥), 拟合得到的  $q$  极大, 即自电离谱峰符合 Lorentzian 峰形. 两种峰形代表着能级可能存在的相互作用类型, 当峰表现为 Fano 峰形时, 该自电离态很可能存在与其他自电离态, 特别

是高  $n$  值自电离态之间的相互作用; 当峰符合 Lorentzian 峰形时, 自电离态仅与其相同能量处的连续态之间存在相互作用.

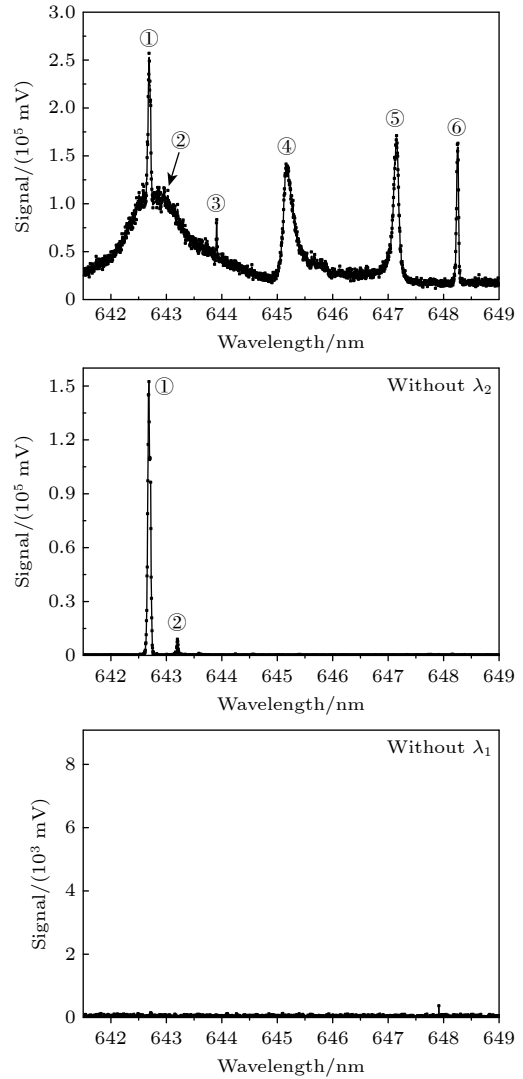


图 4 自电离态扫描典型谱图

Fig. 4. Typical spectrum of the scanning of autoionization levels.

在  $50650\text{--}53450 \text{ cm}^{-1}$  内, 共获取了 47 条具有重复性的自电离态能级, 其中 33 条为首次发现, 特别是首次开展了  $51650 \text{ cm}^{-1}$  以上区域内自电离态的探索工作, 确认了 26 条新自电离态能级的存在, 数据见表 1.

控制激光功率在  $1\text{--}3 \text{ W}$  范围内, 自电离跃迁处于饱和功率曲线的线性段, 根据扫描波段内的激光功率将谱线的光电离信号强度归一化处理, 将其大致分为 S (strong), I (intermediate) 和 W (weak) 三档, 后者约为前者强度的一半, 以比较宽波段内自电离跃迁的强度. 同时, 根据 Fano<sup>[26]</sup> 拟合获取



表 1 由激发态  $35274.5\text{ cm}^{-1}$  跃迁的奇宇称自电离态能级  
Table 1. Odd parity autoionization levels connecting from the excited level  $35274.5\text{ cm}^{-1}$ .

$E/\text{cm}^{-1}$	Width	Strength	Ref.[18]	$E/\text{cm}^{-1}$	Width	Strength	Ref.[18]
53408.90	N	S	New	51873.82	B	I	New
53353.74 <sup>†</sup>	B	S	New	51724.60 <sup>†</sup>	M	S	New
53330.68	M	I	New	51642.24	N	S	51642.2
53321.80	N	I	New	51628.73	N	I	51628.9
53310.02	M	S	New	51509.40	M	S	51509.4
53298.32	N	I	New	51494.64	B	S	New
53267.79	M	S	New	51368.06	M	S	51386.0
53259.85	N	W	New	51295.65 <sup>†</sup>	B	W	51294.1
53251.30	N	I	New	51150.11 <sup>†</sup>	B	W	51151.5
53219.59 <sup>†</sup>	M	S	New	51125.54	B	I	New
53194.18 <sup>†</sup>	B	I	New	51014.87	M	W	New
53147.77	M	W	New	50986.87	N	W	50987.0
53138.94 <sup>†</sup>	M	I	New	50974.56	N	W	50974.7
53046.75 <sup>†</sup>	B	I	New	50950.65	M	I	50950.7
53033.60 <sup>†</sup>	M	I	New	50908.68 <sup>†</sup>	B	I	New
52981.68 <sup>†</sup>	B	I	New	50875.33	M	W	50875.1
52806.85	M	I	New	50872.30	M	I	50872.3
52678.69 <sup>††</sup>	B	S	New	50834.41 <sup>†</sup>	B	I	50833.3
52490.86 <sup>†</sup>	B	W	New	50804.68	N	W	New
52420.31	N	W	New	50774.92 <sup>†</sup>	M	I	50774.3
52415.04	N	W	New	50726.72 <sup>†</sup>	M	S	New
52377.33 <sup>†</sup>	M	I	New	50700.60	M	S	50700.7
52280.25	N	I	New	50657.49	M	S	50657.6
52508.75	B	W	New	—	—	—	—

注: † 谱线呈现Fano峰形; †† 极宽峰, 峰半高宽  $> 100\text{ cm}^{-1}$ .

的峰半高宽  $\Gamma$  的差异, 同样可将自电离态划分为 B (borad,  $\Gamma > 10\text{ cm}^{-1}$ )、M (medium,  $\Gamma=1\text{—}10\text{ cm}^{-1}$ ) 和 N (narrow,  $\Gamma < 1\text{ cm}^{-1}$ ) 三档. 典型的自电离态峰位置不确定度为  $0.5\text{ cm}^{-1}$ , 对宽度达到 B, N 级的部分峰, 不确定度分别可达 1,  $0.1\text{ cm}^{-1}$ , 峰位置的偏差可能是光电离区域原子数密度的差异、激光脉冲功率的抖动等导致的, 考虑到自电离态峰宽普遍远大于不确定度, 能够确认准确的自电离态能级位置.

## 4 分析与讨论

获取的自电离态中, 具有高跃迁截面的能级普遍具有  $1\text{—}10\text{ cm}^{-1}$  的峰宽, 跃迁波长主要在  $550\text{—}560\text{ nm}$ ,  $605\text{—}620\text{ nm}$  和  $645\text{—}650\text{ nm}$  三个范围内, 呈现明显的区域特征. 同时, 部分能级具有  $10\text{ cm}^{-1}$  以上的峰宽, 有可能为内壳层电子激发形

成的自电离态.

激发态  $35274.5\text{ cm}^{-1}$  的电子组态为  $6s6p^2$ , 由电偶极跃迁过程到达的自电离态能级, 其可能的电子组态包括  $6s6pns$ ,  $6s6pnd$  和  $6p^2np$ , 即可能为对应  $\text{Lu}^+ 6s6p$  等电子组态的里德伯态序列, 或双价电子跃迁过程形成的自电离态. 为进一步确认上述能级的电子组态, 需要明确角动量标识, 以实现能级分类. 同时, 由于镱同位素的超精细结构尺度可达  $10\text{ GHz}$ , 采用窄线宽激光实现选择性光电离的过程中, 只能选用部分  $F_1\text{—}F_u$  超精细跃迁, 因此需要标识自电离态角动量, 以明确可能存在的超精细跃迁过程, 同时也为其他激发态的共振光电离提供参考数据. 表 1 中列举的 47 条自电离态能级, 角动量可能为  $1/2$ ,  $3/2$  或  $5/2$ , 一般通过不同  $J$  值激发态能级对同一能区进行扫描, 或通过偏振光谱方法标识唯一角动量.

表 2 奇宇称自电离态能级的角动量  
Table 2.  $J$ -values of odd parity autoionization levels.

From 35274.5 cm <sup>-1</sup>		From 33831.5 cm <sup>-1</sup> [18]		From 34610.5 cm <sup>-1</sup>		$J$
$E/\text{cm}^{-1}$	Width	$E/\text{cm}^{-1}$	Width	$E/\text{cm}^{-1}$	Width	
51642.21	N	51642.2	N	51642.06	N	3/2
51628.71	N	51628.9	N	51629.03	N	3/2
51509.42	M	51509.4	N	—	—	5/2
51494.66	B	—	—	—	—	7/2
51368.06	M	51368.0	N	51368.12	M	3/2
51295.65	B	51294.1	B	—	—	5/2
51014.87	B	—	—	—	—	7/2
50986.87	N	50987.0	N	—	—	5/2
50974.56	N	50974.7	N	50974.47	M	3/2
50950.65	M	50950.7	N	—	—	5/2
—	—	50913.3	N	50913.18	N	1/2
50908.68	B	—	—	—	—	7/2
—	—	50887.8	N	50887.65	N	1/2
50875.33	M	50875.1	B	50875.32	M	3/2
50872.30	M	50872.3	N	—	—	5/2
50834.41	B	50833.3	B	50832.77	B	3/2
50804.68	N	—	—	—	—	7/2
50774.92	M	50774.3	M	50773.31	M	3/2
50726.72	M	—	—	—	—	7/2
50700.60	M	50700.7	N	—	—	5/2
50657.49	M	50657.6	N	—	—	5/2

在基于激发态 35274.5 cm<sup>-1</sup> 的自电离态扫描过程中, 获取了 3 条第 2 步跃迁干扰峰, 以图 4 中①为例, 分别对应了  $J = 1/2$  的激发态能级 32986.62 cm<sup>-1</sup> ( $\lambda = 642.70$  nm), 34610.52 cm<sup>-1</sup> ( $\lambda = 581.95$  nm) 和  $J = 3/2$  的 33831.46 cm<sup>-1</sup> ( $\lambda = 609.60$  nm). 由上述能级对同一能区范围的扫描结果, 根据角动量跃迁定则  $\Delta J = 0, \pm 1$ , 可以标识自不同激发态扫描能区重叠范围内的自电离态的角动量数值. 由于 Rath 等 [18] 已扫描了激发态 33831.5 cm<sup>-1</sup> 在 50650—51650 cm<sup>-1</sup> 内的自电离跃迁谱线, 针对同一能区我们补充了由激发态 34610.52 cm<sup>-1</sup> 跃迁的自电离态扫描实验, 结果在表 2 列出, 确认了 21 条自电离态能级的  $J$  值, 首次实现了镱的奇宇称自电离态能级的角动量数值标识. 其中, 仅自激发态 35274.5 cm<sup>-1</sup> 扫描获取的自电离态标识为  $J = 7/2$ , 为确保上述结果准确可靠, 未来还需通过其他激发态能级扫描同一能区来确认.

通过角动量粗略分类后, 结合峰宽数值, 可大

致推断能级是否属于自电离里德伯态序列, 例如  $J = 3/2$  的自电离态 51368.06 cm<sup>-1</sup> 和 50774.92 cm<sup>-1</sup> 很可能属于同一里德伯态序列, 同理也包括  $J = 5/2$  的自电离态 51509.42 cm<sup>-1</sup> 和 50700.60 cm<sup>-1</sup>. 不过, 对确定里德伯序列来说, 由于 Lu<sup>+</sup> 6s6p 电子组态在电离阈上 30000 cm<sup>-1</sup> 左右, 本次获取的自电离态能级分布零散, 因此扫描波段仍需进一步拓宽, 获取更多的自电离态能级, 从而明确其电子组态和里德伯态序列.

通过确定角动量数值, 可确认自其他激发态出发的自电离跃迁过程是否禁戒, 从而用于构建更多的高效光电离路径, 也为镱原子的自电离态理论计算提供了参考数据.

## 5 结 论

为获取激发态 35274.5 cm<sup>-1</sup> 的自电离跃迁谱线, 构建高效的多步共振光电离路径, 利用实验室搭建的激光共振电离飞行时间质谱系统, 系统性研

究了 50650—53450  $\text{cm}^{-1}$  内的奇宇称自电离态能级, 首次测定激发态 35274.5  $\text{cm}^{-1}$  的能级寿命为  $(31.6 \pm 1.7)$  ns, 揭示了 47 条具有重复性的自电离态, 其中 33 条为首次发现, 通过 Fano 拟合和归一化处理明确了自电离态的峰宽和跃迁强度. 本文所获取的自电离跃迁过程, 相较于非共振电离可大幅提升光电离效率, 为构建具有获取高丰度  $^{176}\text{Lu}$  潜力的三步三色光电离路径提供了关键参考数据. 为确定自电离态能级的电子组态, 结合不同  $J$  值激发态能级对同一能区的扫描工作, 首次确认了 21 条自电离态的角动量, 后续可用于构建更多高效光电离路径, 及镨原子的自电离态理论计算研究. 为确认自电离态的电子组态和里德伯序列, 还需拓宽实验扫描范围, 获取更多自电离态数据.

## 参考文献

- [1] Fuoco V, Argiroffi G, Mazzaglia S, Lorenzoni A, Guadalupi V, Franza A, Scalorbi F, Ailberti G, Chiesa C, Procopio G, Seregini E, Maccauro M 2022 *Tumori. J.* **108** 315
- [2] Mittra E S 2018 *Am. J. Roentgenol.* **211** 278
- [3] Vogel W V, van der Marck S C, Versleijen M W J 2021 *Eur. J. Nucl. Med. Mol. I.* **48** 2329
- [4] Dash A, Pillai M R A, Knapp F F 2015 *Nucl. Med. Molec. Imag.* **49** 85
- [5] D'yachkov A B, Kovalevich S K, Labozin A V, Labozin V P, Mironov S M, Panchenko V Y, Firsov V A, Tsvetkov G O, Shatalova G G 2012 *Quantum Electron* **42** 953
- [6] Gadelshin V, Cocolios T, Fedoseev V, Heinke R, Kieck T, Marsh B, Naubereit P, Rothe S, Stora T, Studer D, van Duppen P, Wendt K 2017 *HFI* **238** 28
- [7] Li R, Lassen J, Kunz P, Mostamand M, Reich B B, Teigelhofer A, Yan H, Ames F 2019 *Spectrochim. Acta B* **158** 105633
- [8] Gadelshin V, Heinke R, Kieck T, Kron T, Naubereit P, Rosch F, Stora T, Studer D, Wendt K 2019 *Radiochim. Acta* **107** 653
- [9] Suryanarayana M V, Sankari M 2021 *Sci. Rep-UK* **11** 18292
- [10] Suryanarayana M V 2021 *Sci. Rep-UK* **11** 6118
- [11] Wendt K, Trautmann N 2005 *Int. J. Mass. Spectrom.* **242** 161
- [12] Xu C B, Xu X Y, Ma H, Li L Q, Huang W, Chen D Y, Zhu F R 1993 *J. Phys. B-At. Mol. Opt.* **26** 2827
- [13] Kujirai O, Ogawa Y 1998 *J. Phys. Soc. Jpn.* **63** 1056
- [14] Ogawa Y, Kujirai O 1999 *J. Phys. Soc. Jpn.* **68** 428
- [15] Li R, Lassen J, Zhong Z P, Jia F D, Mostamand M, Li X K, Reich B B, Teigelhofer A, Yan H 2017 *Phys. Rev. A* **95** 052501
- [16] Li Z M, Zhu F R, Zhang Z B, Deng H, Zhai L H, Wang C H, Ren X J, Wan K Y, Zhang L X 2005 *J. Chin. Mass. Spectr. Soc.* **26** 45 (in Chinese) [李志明, 朱凤蓉, 张子斌, 邓虎, 翟利华, 王长海, 任向军, 万可友, 张利兴 2005 *质谱学报* **26** 45]
- [17] D'yachkov A B, Gorkunov A A, Labozin A V, Mironov S M, Tsvetkov G O, Panchenko V Y, Firsov V A 2018 *Opt. Spectrosc* **125** 839
- [18] Rath A D, Biswal D, Kundu S 2021 *J. Quant. Spectrosc. Ra.* **270** 107696
- [19] Voss A, Sonnenschein V, Campbell P, Cheal B, Kron T, Moore I D, Pohjalainen I, Raeder S, Trautmann N, Wendt K 2017 *Phys. Rev. A* **95** 032506
- [20] Shen X P, Wang W L, Zhai L H, Deng H, Xu J, Yuan X L, Wei G Y, Wang W, Fang S, Su Y Y, Li Z M 2018 *Spectrochim. Acta B* **145** 96
- [21] Kneip N, Dullmann C E, Gadelshin V, Heinke R, Mokry C, Raeder S, Runke J, Studer D, Trautmann N, Weber F, Wendt K 2020 *HFI* **241** 45
- [22] Sahoo A C, Mandal P K, Shah M L, Dev V 2020 *J. Quant. Spectrosc. Ra.* **241** 106714
- [23] Zhang J Y, Xue Y, Zhou H R 2024 *J. Atom. Mol. Phys.* **41** 014002 (in Chinese) [张钧尧, 薛轶, 周鸿儒 2024 *原子与分子物理学报* **41** 014002]
- [24] Li Y F, Zhang J Y, Chai J J, Wei S Q, Chen C 2023 *Vacuum and Cryogenics* **29** 486 (in Chinese) [李云飞, 张钧尧, 柴俊杰, 魏少强, 陈晨 2023 *真空与低温* **29** 486]
- [25] Fedchak J A, der Hartog E A, Lawler J E, Palmeri P, Quinet P, Biemont E 2000 *Astrophys. J.* **542** 1109
- [26] Fano U 1961 *Phys. Rev.* **124** 1866

# Resonance ionization spectrum of autoionization states of lutetium atom<sup>\*</sup>

Zhang Jun-Yao<sup>1)2)†</sup> Xiong Jing-Yi<sup>2)</sup> Wei Shao-Qiang<sup>1)2)</sup>  
Li Yun-Fei<sup>1)2)</sup> Lu Xiao-Yong<sup>1)2)</sup>

1) (*National Key Laboratory of Particle Transport and Separation Technology, Tianjin 300180, China*)

2) (*Research Institute of Physical and Chemical Engineering of Nuclear Industry, Tianjin 300180, China*)

( Received 13 June 2023; revised manuscript received 18 August 2023 )

## Abstract

<sup>177</sup>Lu is an important medical isotope used in imaging-guided radiotherapy, and it can be produced by irradiating <sup>176</sup>Lu or <sup>176</sup>Yb with high abundance. With an increasing demand for medical isotopes, it is very essential to improve the supply capacity for <sup>177</sup>Lu. The multi-step multi-color photoionization method is an effective method to obtain isotopes, and the information of odd-parity autoionization levels is essential. Laser resonance ionization spectroscopy is one of a few spectroscopic experimental methods that can study autoionization levels. An experimental system is developed for the frontier spectroscopic research, and it consists of custom-made tunable lasers and a high-resolution time of flight mass spectrometer. The lifetime of the excited state 35274.5 cm<sup>-1</sup> is measured to be (31.6 ± 1.7) ns by the delayed photoionization method for the first time. A three-step three-color photoionization process is used to detect the autoionization levels, with a delay of 30 ns between  $\lambda_2 - \lambda_1$  and  $\lambda_3 - \lambda_2$  respectively, in order to avoid any unexpected transitions. Forty-seven odd-parity autoionization levels are obtained, of which 33 levels are discovered for the first time, and the  $\lambda_2$  and  $\lambda_1$  are blocked to exclude possible interference peaks, such as the  $\lambda_1 + \lambda_3 + \lambda_3$  transition. Several autoionization levels show asymmetrical peak shapes, and the Fano fitting is carried out for all the levels to determine the widths and relative transition strengths of the autoionizing transitions. This study provides critical data for the high-efficient photoionization of lutetium atoms in the visible range. The angular momenta of 21 odd-parity autoionization levels in an energy range of 50650–51650 cm<sup>-1</sup> are identified for the first time, which provides a reference for determining the forbidden state of electric dipole transitions from other excited states and ascertaining the electronic configuration.

**Keywords:** autoionization levels, resonance ionization, lutetium atom

**PACS:** 32.80.Zb, 32.70.Jz, 42.55.Mv

**DOI:** 10.7498/aps.72.20230978

<sup>\*</sup> Project supported by the Liaoyuan Project of China Nuclear Energy Industry Corporation.

<sup>†</sup> Corresponding author. E-mail: [junyao-z18@tsinghua.org.cn](mailto:junyao-z18@tsinghua.org.cn)





## 镱原子自电离态的共振电离谱

张钧尧 熊静逸 魏少强 李云飞 卢肖勇

## Resonance ionization spectrum of autoionization states of lutetium atom

Zhang Jun-Yao Xiong Jing-Yi Wei Shao-Qiang Li Yun-Fei Lu Xiao-Yong

引用信息 Citation: *Acta Physica Sinica*, 72, 193203 (2023) DOI: 10.7498/aps.72.20230978

在线阅读 View online: <https://doi.org/10.7498/aps.72.20230978>

当期内容 View table of contents: <http://wulixb.iphy.ac.cn>

## 您可能感兴趣的其他文章

### Articles you may be interested in

对氯苯腈的双色共振双光子电离和质量分辨阈值电离光谱

Two-color resonance enhanced two-photon ionization and mass analyzed threshold ionization spectroscopy of *p*-chlorobenzonitrile  
物理学报. 2022, 71(10): 103301 <https://doi.org/10.7498/aps.71.20220089>

Ar原子序列双光双电离产生光电子角分布的理论计算

Theoretical calculations on photoelectron angular distribution of sequential two-photon double ionization for Ar atom  
物理学报. 2020, 69(5): 053201 <https://doi.org/10.7498/aps.69.20191814>

邻羟基苯腈的双色共振增强多光子电离光谱及Franck-Condon模拟

Two-color resonance enhanced multiphoton ionization spectroscopy of *o*-hydroxybenzonitrile and Franck-Condon simulation  
物理学报. 2022, 71(2): 023301 <https://doi.org/10.7498/aps.71.20211659>

Ar原子和K<sup>+</sup>离子序列双光双电离光电子角分布的非偶极效应

Non-dipole effects on angular distribution of photoelectrons in sequential two-photon double ionization of Ar atom and K<sup>+</sup> ion  
物理学报. 2022, 71(6): 063201 <https://doi.org/10.7498/aps.71.20211905>

厚原子蒸气介质中原子选择性光电离的理论研究

Numerical research of selectively photoionization in thick atom vapor medium  
物理学报. 2018, 67(8): 083202 <https://doi.org/10.7498/aps.67.20172340>

基于极紫外光的Ne, Xe原子电离

Photoionization of Ne and Xe atoms induced by extreme ultraviolet photons  
物理学报. 2022, 71(14): 143201 <https://doi.org/10.7498/aps.71.20220341>