

수은 원자의 2-색 3-단계 선택적 광이온화 연구

노시표 · 한재민 · 정도영 · 차형기 · 이종민

한국원자력연구소, 원자분광학연구실

(1992년 2월 8일 받음)

2색 3-단계 공명이온화 구도를 이용하여 수은 동위원소들을 선택적으로 광이온화시켰다. 중간 여기 준위로서 6^3P_1 및 6^1D_2 를 선택했으며, 이때 사용된 레이저파장은 253.7 nm (1차 여기)와 313.2 nm(2차 여기 및 이온화)이었다. 동위원소들의 선택적 여기는 선폭 ~ 700 MHz의 단일종모드 펄스 레이저를 사용한 1차 여기단계에서 이루어졌으며, 2차 여기 및 이온화 단계에서는 비교적 큰 선폭(~ 5 GHz)의 레이저를 사용하였다. 본 연구에서는 time-of-flight 질량분석기를 사용하여 질량 스펙트럼을 실시간으로 얻었으며, 이를 이용하여 레이저 세기가 수은동위원소 선택성에 미치는 영향을 분석하였다.

I. 서 론

좁은 선폭의 고효율 색소레이저를 사용하는 다광자 공명 이온화 분광학(Multi-photon Resonance Ionization Spectroscopy)은 높은 이온화준위를 가진 원자나 이들 동위원소들의 선택적 광이온화 특성을 연구하는데 매우 유용한 수단이다.^[1,2] 수은 원자의 경우 첫번째 이온화 에너지는 10.437 eV로서 가시-자외 영역의 레이저를 사용할 때 적어도 3-단계 이상의 다단계 흡수 과정을 거쳐야 이온이 된다. 수은 원자의 다단계 공명 이온화 연구는 Dalby 등에 의해 처음 시도되었다.^[3,4] 이들은 1-색 다단계 방법으로 Rydberg 준위들을 거쳐 공명 이온화 시킴으로써, 다광자 여기의 선택률과 레이저의 편광의 존성에 대한 결과를 보고하였다. 또한 수은 원소의 극미량 분석을 목적으로 1-색 또는 2-색 3-단계 광이온화 분석법이 고안되었다.^[5,6] 특히 $6^1S_0-6^3P_1-7^3S_1$ -continuum 경로를 따르는 2-색 3-단계 광이온화 구도는 탁월한 분석감도를 나타내어 분석한계치(detection limit)를 피코그램 이하까지 낮추었다.^[6]

원자번호 80인 수은은 7개의 동위원소 즉, ^{196}Hg (0.15%), ^{198}Hg (10.1%), ^{199}Hg (17.0%), ^{200}Hg (23.1%), ^{201}Hg (13.2%), ^{202}Hg (29.6%), ^{204}Hg (6.85%) 들로 구성되어 자연중에 존재한다.(괄호안의 성분비는 자연성분비를 나타냄) 한 원자의 동위원소들은 질량차이와 이로인한 핵내부의 전하분포의 변화로 전자 에너지 준위가 약간씩 다르게

되며, 이러한 효과가 분광방출선을 통해 관측될때 이를 동위원소 이동 (isotope shift) 이라 한다. 바닥상태에 있는 특정 동위원소를 효과적으로 여기시키기 위해서는 전이선의 흡수단면적이 거야함은 물론 동위원소 이동값이 여기 레이저의 분광선폭보다 충분히 커야 하므로, 일반적으로 주양자수가 작은 준위에서 첫번째 선택적 여기가 이루어지는 것이 보통이다. 이러한 이유 때문에 수은 원자의 경우 흔히 첫번째 여기준위로서 6^1P_1 준위를 선택한다. 수은 동위원소에 대한 선택적 광이온화 연구는 3-색 3-단계 구도를 사용한 Dyer 등에 의해 처음으로 수행되었다.^[7,8] 두 전극 사이에 전장이 걸린 밀폐된 수은셀에서 선폭이 2.6 GHz 이하인 두 여기 레이저를 사용한 Dyer 등은 $6^1S_0-6^3P_1-8^1S_0$ -continuum의 경로로 이온화시켰으며, 이를 통해 6^3P_1 과 7^3S_1 두 여기 준위의 동위원소 이동값을 측정· 비교하였다.^[7] 또한 자동이온화 준위를 이용한 3-색 3-단계 구도인 $6^1S_0-6^3P_1-8^1S_0-6p^1P_1$ 경로를 이용한 연구에서는,^[8] 핵반응에 의해 생성된 두 개의 ^{197}Hg 핵이성질체(nuclear isomer)의 선택적 여기도 가능함을 보고하였다.

본 연구에서는 수은 동위원소들의 효율적인 선택적 광이온화 구도 및 이의 최적 실험조건을 구하기 위해 그림 1에서 보듯이 2-색 3-단계 구도인 $6^1S_0-6^3P_1-6^1D_2$ -continuum의 이온화 경로를 선택하였다. 일차적으로 밀폐된 수은셀에서 2차 여기 레이저의 파장을 주사시키면서 광이온화 스펙트럼을 얻어서, 이온신호가 가장 큰

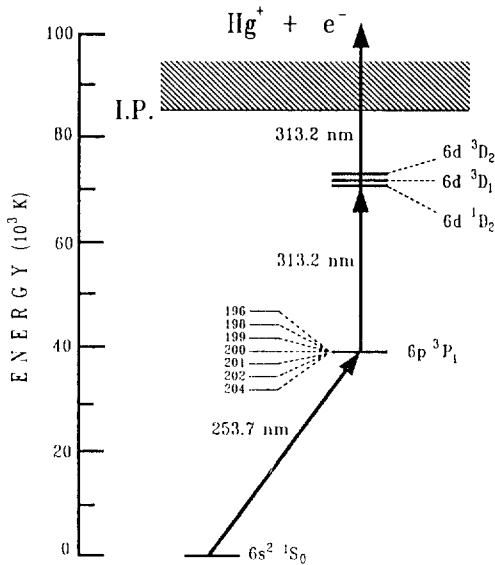


Fig. 1. Partial energy level diagram for mercury atom showing 2-color 3-step resonance photoionization scheme.

전이선으로부터 2차 여기준위를 선택하였으며, 다음으로 2차 여기레이저의 파장을 이 전이가 가장 큰 전이선에 고정시킨 후 1차 여기레이저의 파장을 주사시켜 수은 동위원소들의 동위원소 이동값과 초미세구조들을 관찰할 수 있는 $6^1S_0-6^3P_1$ 전이에 대한 스펙트럼을 얻었다. 그러나 이 때 얻어진 스펙트럼은 몇몇 동위원소들이 도플러 선폭 및 레이저 선폭에 의해 항상 다른 동위원소들과 겹쳐 나타나 각각의 동위원소에 대한 정확한 광이온화 특성연구에 한계를 주었다. 이를 극복하기 위하여 본 연구에서는 TOF 질량분석기를 자체 제작하여 $6^1S_0-6^3P_1$ 스펙트럼에서 겹쳐진 신호들이 어떤 동위원소들에 의하여 구성되고 또 이들의 상대적 크기가 실험조건에 따라 어떻게 변화되는지를 실시간으로 측정·확인하였으며, 이를 통해 레이저 세기가 2-색 3-단계 구도를 이용한 수은 동위원소의 광이온화 반응에서 동위원소 선택성에 미치는 영향을 조사하였다.

II. 실험

그림 2는 2-색 3-단계 광이온화 실험을 위한 실험장치 구성도이다. Q-switched Nd:YAG 레이저 (Lumonics HY-750)의 제2고조파(532 nm)와 제3고조파(355 nm)로 펄핑시켜 발전되는 2대의 색소레이저(Lumonics HD-SLM &

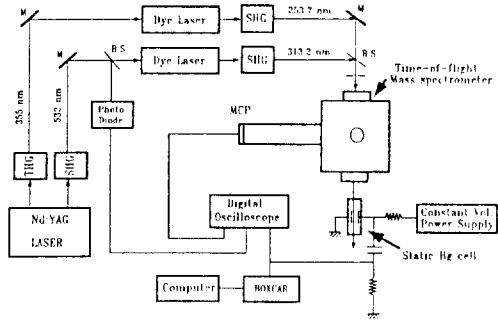


Fig. 2. Experimental apparatus for 2-color 3-step resonance ionization for mercury isotopes. Abbreviations used are as follows: SHG, second harmonic generation crystal; THG, third harmonic generation crystal; MCP, multichannel plate detector.

HD-300)의 가시광은 KDP 및 BBO 비선형 결정을 사용하여 제2고조파인 자외선으로 변환시켰다. 이 때 레이저광의 선폭은 각각, 1차 여기 파장인 253.7 nm의 경우 약 0.7 GHz, 2차 여기 및 이온화 파장인 313.2 nm의 경우 약 5 GHz이었으며, 펄스폭은 약 8 ns였다. 두 레이저는 반사경과 beam splitter를 이용하여 같은 방향으로 반응챔버에 입사시켰으며, 지름 3 mm의 aperture를 사용하여 레이저광의 단위면적을 일정하게 유지시켰다. 수은 원자빔과 광 반응하는 영역에서 2차 여기 레이저의 beam dia.는 1 mm 정도로 1차 여기 레이저의 중앙에 오도록 하였으며, 두 여기 레이저는 시간적으로 거의 동시에 입사되었다.

레이저에 의해 광이온화된 동위원소들의 질량분포를 실시간으로 측정하기 위하여 TOF(Time-of-flight) 형 질량분석기를 자체 제작하였다. 레이저광에 의해 생성된 이온들은 길이 1m의 비행관 (flight tube)를 거쳐 다중 채널판(multichannel plate) 형 전자증폭기를 거치면서 10^6 배 증폭되었으며, 이 신호는 디지털 오실로스코프 (Lecroy 9450)를 통해 질량값 및 대응한 성분비를 측정 가능케 하였다. TOF 질량분석기는 이온형성 위치에 무관하게 질량수/전하량의 비가 같은 이온들이 일정거리를 이동하는데 소요되는 시간이 동일하며, 동시에 높은 질량 분해능을 제공하는 space-focusing 방법⁹⁾을 사용하였다. 가속전극에는 약 2000-3000 V의 전압을 걸어 주었으며, 전극중앙에 SUS 망 (400 mesh)을 넣어 균일한 전기장을 형성토록 하였다. 또한 선형 feedthrough를 전극에 부착시켜 진공용기 외부에서 전극간격을 조절하도록 하였

으며, 비행관내에는 x-y 편향판 (최대 전장 50 V/cm)을 설치하여 전자증폭기에서 최대 이온신호가 발생되도록 하였다. TOF 질량분석기의 분해능은 형성된 이온의 비행시간과 이온신호의 선폭 (FWHM)의 비로부터 계산한 바 약 400으로 측정되었다.

수은 시료는 상온의 증기압을 유지하고 있는 소형 진공실린더(~30 cc)내에 저장하였으며, 실험시에는 heating tape를 사용하여 진공실린더를 일정 온도로 (~50 °C) 가열하고, 미세조정 밸브를 사용하여 수은 시료가 주춧배에 원자빔의 형태로 주입되도록 하였다. 또한 한편으로 레이저 파장을 수은 동위원소 전이선에 동조시키기 위해서 밀폐형 수은셀을 사용하였다. 이 셀은 내경이 25 mm이고 길이 50 mm인 석영유리관으로 내부에는 레이저광에 의해 이온화된 수은 이온을 검출할 수 있는 Ta 전극판(1 cm×1 cm)을 1 cm 간격으로 설치하였다. 전극 양단에는 약 200~300 V의 전압을 걸어주었으며, 검지되는 이온신호는 BOXCAR averager (STANFORD; SR250)와 personal computer를 사용하여 통계·처리하였다.

III. 결과 및 논의

그림 3은 밀폐된 수은셀에서 얻어진 2-색 3-단계 공명 이온화 스펙트럼을 보여준다. 그림 3(a)는 1차 여기 레이저를 253.7 nm의 공명파장에 고정시킨 후 2차 여기 레이저 파장을 주사한 경우로서, 레이저 선폭이 약 5 GHz인데 반해 $6^3P_1-6^{1,3}D_2$ 전이선의 각 동위원소간의 이동값은 2 GHz 미만이므로,^[10] 각 전이선에서 동위원소로 인한 신호의 갈라짐은 관찰할 수 없었다. 그림 3(a)에서 보여주는 3개의 신호를 비교해 볼 때, $6^1S_0-6^3P_1-6^{1,3}D_2$ -continuum 구도에서 $6^1S_0-6^3P_1$ 전이는 공통으로 관여하며, 에너지 차이가 거의 없는 6^3D_2 , 6^3D_1 , 6^1D_2 준위들에서 continuum으로의 이온화단면적이 비슷함을 가정할 때, 각각의 신호의 크기 차이는 $6^3P_1-6^3D_2$, $6^3P_1-6^3D_1$, $6^3P_1-6^1D_2$ 전이선들의 여기단면적의 상대적 크기라 판단된다. 이러한 이유에서 본 실험에서는 중간 여기를 위한 레이저 파장을 여기단면적이 상대적으로 큰 $6^3P_1-6^1D_2$ 전이에 고정시켜 사용하였다.

그림 3(b)는 두번째 여기 레이저의 파장을 $6^3P_1-6^1D_2$ 전이의 공명에너지인 313.2 nm에 고정시킨 후 1차 여기 레이저의 파장을 주사한 경우로 A, B, C, D, E로 표시된 5개의 신호들이 관찰되며 각각의 신호들은 수은 동위원소들의 동위원소 이동값 및 초미세구조의 위치와 잘 일치함을 보여준다. A는 ^{199}Hg 과 ^{201}Hg 의 합쳐진 신호로

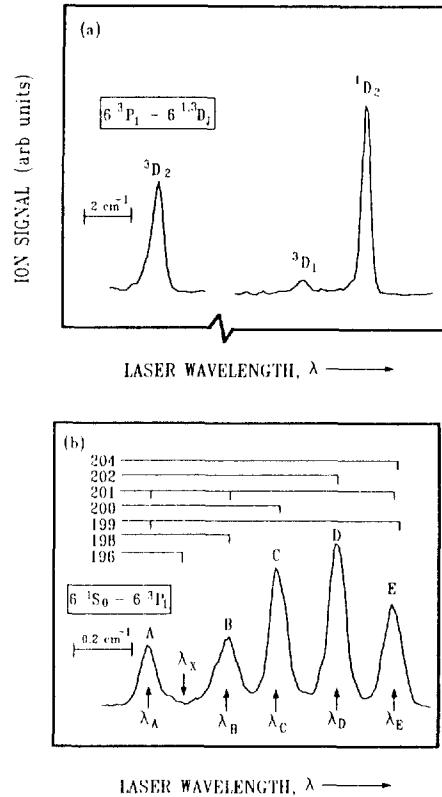


Fig. 3. 2-color 3-step resonance ionization spectra of natural mercury. These spectra were obtained from a static Hg cell with two plate-type electrodes.

(a) The wavelength of the second excitation laser (313.2 nm) was scanned while that of the first one is fixed.

(b) The wavelength of the first excitation laser (253.7 nm) was scanned while that of the second one is fixed.

초미세구조 신호간의 간격이 0.677 GHz 밖에 안되어서,^[11] 상온에서의 도플러 선폭 (~1 GHz)은 물론 사용한 레이저 선폭(~0.7 GHz) 보다도 작아 분해가 불가능하다. 마찬가지로 B는 ^{198}Hg 과 ^{201}Hg , E는 ^{200}Hg , ^{201}Hg , ^{199}Hg 의 합쳐진 신호로 본 실험조건하에서 개개의 동위원소들의 분리된 신호의 관찰은 불가능하다. 반면 C와 D는 초미세구조가 없는 짝수 동위원소들인 ^{200}Hg 및 ^{202}Hg 의 신호들로 다른 동위원소들의 신호와 겹쳐지지 않으며, 그 크기의 비는 자연성분비와 일치한다. 자연성분비가 0.15 % 밖에 되지않는 ^{196}Hg 의 λ_x 에 해당되는 신호는 잡음 신호에 묻혀 관찰되지 않았다.

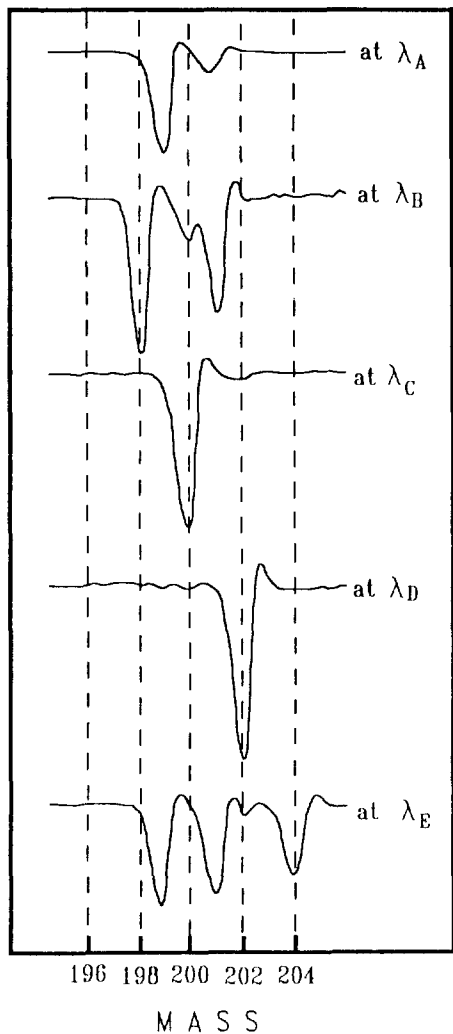


Fig. 4. Mass spectra obtained when the wavelength of the first excitation laser was tuned at the peaks in the spectrum of Fig. 3(b). The I_1 and I_2 used were $\sim 1 \text{ kW/cm}^2$, and $\sim 70 \text{ kW/cm}^2$, respectively.

TOF형 질량분석기는 동위원소들의 선택적 광이온화 현상을 실시간으로 관찰하기에 적합한 장치이다. 그림 4는 그림 3(b)의 각 신호의 최고점에 해당되는 파장에 1차 여기 레이저가 동조되었을 경우 얻어진 질량 스펙트럼들이다. λ_A 에서는 ^{201}Hg 과 ^{199}Hg , λ_B 에서는 ^{198}Hg 과 ^{201}Hg 이 주신호, ^{200}Hg 이 주변신호로 나타나며, λ_C 에서는 ^{200}Hg , λ_D 에서는 ^{202}Hg , λ_E 에서는 ^{204}Hg , ^{201}Hg , ^{199}Hg 가 검지되며 ^{202}Hg 가 주변신호로 나타난다. 여기서 ^{199}Hg 가

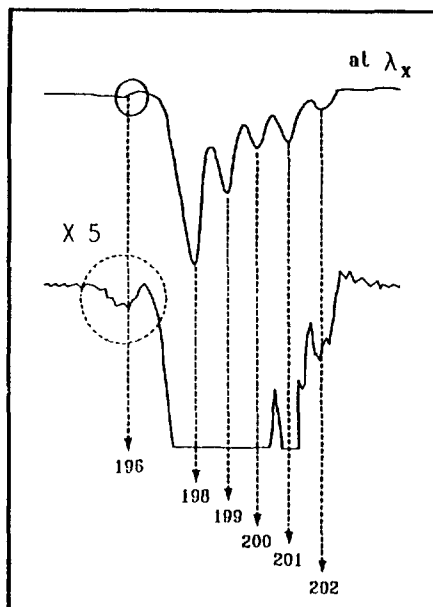


Fig. 5. Mass spectra obtained when the wavelength of the first excitation laser was tuned at λ_x where ^{196}Hg peak is thought to exist. $I_1 = \sim 3 \text{ kW/cm}^2$, $I_2 = \sim 500 \text{ kW/cm}^2$.

λ_A 및 λ_E 두 파장에서 주신호로 나타나는 이유는 그림 3(b)의 상단 diagram에서 보듯이 홀수 동위원소(odd isotopes)들의 경우 초미세구조를 가지고 있기 때문에 생기는 결과이나, λ_B 에서 보이는 ^{200}Hg , λ_E 에서 보이는 ^{202}Hg 신호는 주신호에서 약 3~4 GHz 이상 떨어져 있는 주변신호들로 선평증가 효과에 의해 함께 관찰되고 있다. 본 실험에서는 수은 시료를 원자빔 형태로 주입시켜 도플러 효과에 의한 선평증가를 최소화시켰고, 1차 레이저의 선평이 0.7 GHz 밖에 되지 않음을 감안할 때, 광이온화 스펙트럼에서 주변 동위원소들이 함께 나타나는 주원인은 레이저 세기에 의한 원인으로 판단된다. 이에 대한 상세한 설명은 그림 6에서 보여주는 결과를 통해 다시 언급한다.

그림 5는 λ_x 에서 관찰되는 ^{196}Hg 주변의 질량 스펙트럼을 보여준다. 자연성분비가 0.15%인 ^{196}Hg 의 경우는, 신호감도를 높이기 위해 레이저 출력력을 3~7배 정도 증가시켰다. ^{196}Hg 의 신호측정은 가능하였지만 출력증가에 따른 선평증가는 주변의 동위원소들까지도 함께 이온화시키고 있다. 그림 3(b)로부터 예상되었듯이 ^{196}Hg 와 근접해 있는 ^{198}Hg , ^{199}Hg , ^{201}Hg 등은 자연성분비에 비해

상대적으로 큰 신호를 보이고 있다. 또한 그림 4와 5에서 보여준 스펙트럼들로부터 질량분석기의 분해능 측정이 가능하다. 진공용기 중앙에서 생성된 이온들이 MCP 이온검출기까지 도달되는 시간은 $20 \mu\text{s}$ 정도이며 동위원소 신호의 선폭이 약 $0.025 \mu\text{s}$ (FWHM) 임을 감안할 때, 제작된 TOF 질량분석기의 질량분해능은 약 400 정도가 됨을 알 수 있다.

2-색 3-단계 선택적 광이온화 반응에서, 산호감도를 증가시키기 위해 레이저 세기를 증가시키는 데는 한계가 있음을 위의 결과들로부터 알 수 있다. I_1 을 1차 여기 레이저의 세기, I_2 를 2차 및 이온화 레이저의 세기라 할 때, 그림 6(a)는 I_2 를 $\sim 70 \text{ kW/cm}^2$ 에 일정하게 유지시키면서 I_1 을 변화시킨 경우로서, $\sim 20 \text{ kW/cm}^2$ 부터 주변 동위원소들의 신호가 관찰되기 시작하며, $\sim 40 \text{ kW/cm}^2$ 부터는 동위원소 선택성에 심각한 영향을 주고 있음을 알 수 있다. 마찬가지로 I_1 을 $\sim 70 \text{ kW/cm}^2$ 에 고정시킨 후, I_2 를 변화시킬 경우도 그림 6(b)에서 보듯이 200 kW/cm^2 이상에서는 선택성이 나빠지고 있음을 알 수 있다. ^{202}Hg 광이온화시 레이저 세기를 증가시킴에 따라 주변 동위원소들의 신호가 관찰되는 것은 레이저 세기에 의해 $6^1\text{S}_0-6^3\text{P}_1$ 전이의 분광선폭이 약 $3\sim 4 \text{ GHz}$ 정도 증가함을 의미하여, 이는 단일광자 전이에 의한 선택증가 결과에 비해 수십배 이상 크다.^[12] I_1 과 동시에 입사되는 I_2 의 존재는 I_1 에 의해 증가된 6^3P_1 준위의 원자밀도를 효과적으로 감쇄시키고 있어서, 2-색 3-단계 광이온화 반응시 $6^1\text{S}_0-6^3\text{P}_1$ 전이의 분광선폭은 흔히 흡수 스펙트럼에서 관찰되는 단일광자 전이에 의한 경우보다는 현격히 증가되는 현상을 보여준다. 더구나 그림 6(b)에서 보듯이 I_1 의 경우보다는 크지 않지만 I_2 에 의한 분광선폭의 증가는 I_2 가 증가함에 따라 6^3P_1 의 원자밀도 감쇄 속도를 계속 증가시키고 있음을 뜻하며, 이는 본 실험에서 사용된 I_2 가 이온화를 위한 포화강도에 도달하지 못하고 있음을 간접적으로 보여주고 있다. 앞으로 이에 대한 정량적인 결과가 후속 연구를 통해 밝혀질 것이다. 본 실험에서 생성된 이온이나 여기된 원자가 다른 동위원소들과의 충돌에 의해 에너지 이동(energy transfer) 혹은 전하 이동(charge transfer)이 일어나고 이로 인해 공명 파장과 관련없는 주변 동위원소들이 함께 이온화될 가능성은 희박하다. 왜냐하면 그림 6은 진공챔버내의 수은 원자밀도가 $\sim 10^{12} \text{ atoms/cm}^3$ 이하에서 얻어진 실험결과들로 효율적으로 충돌반응이 일어나기 매우 어려우며, 1차 및 2차 두 레이저가 동시에 입사될 경우 시간적으로 여기된 원자가 다른 원자들과 충돌할 확률도 매우 작기 때문이다.

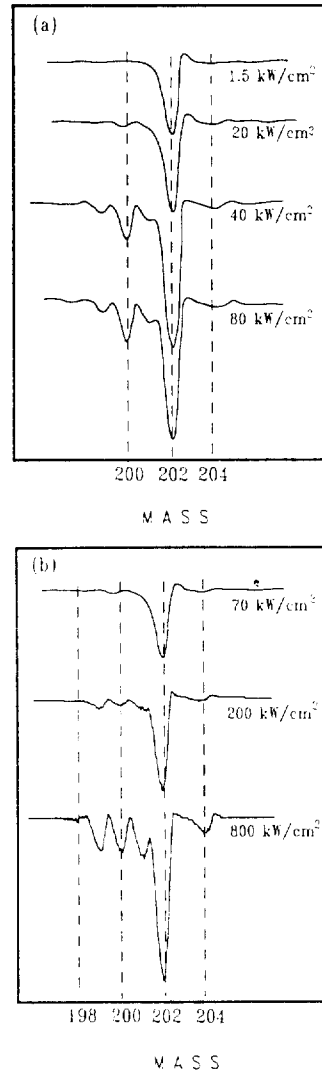


Fig. 6. Mass spectra showing power broadening effects. The laser wavelength was tuned at the peak of ^{202}Hg .

- (a) I_1 was varied
- (b) I_2 was varied

IV. 결 론

본 연구는 수은 동위원소들의 선택적 광이온화 효율에 영향을 미치는 여러가지 실험조건을 체계화시키기 위하여 수행되었다. 펄스형 고분해능 색소 레이저를 이용하여 수은 동위원소를 선택적으로 광이온화시켰으며, 초미세 구조들에 의해 겹쳐진 흡수 동위원소들의 신호를 자체

제작한 TOF형 질량분석기(질량분해능 ~ 400)를 이용하여 분리하였다. 2-색 3-단계 광이온화 구도에서 질량 스펙트럼의 분해능이 레이저 출력에 의해 크게 영향을 받아 1차 레이저 세기는 40 kW/cm^2 이하로, 2차 및 이온화 레이저 세기는 200 kW/cm^2 이하로 각각 유지하여야 적절한 동위원소 선택성을 보임을 알 수 있었다.

본 실험에서 시도된 2-색 3-단계 광이온화 구도는 3-색 3-단계 구도를 시도하기 전에 수행된 예비실험으로서 ^{196}Hg 를 선택적으로 광이온화시키기에는 미흡하였다. 자연성분비가 0.15%로서 7개 동위원소들중 가장 작은 성분비를 가진 ^{196}Hg 의 이온신호는 레이저 세기를 증가시켜줌으로써 관찰할 수 있었으나 이로인한 선풍증가는 주변 동위원소들도 함께 이온화시켜 선택성을 저하시키는 결과를 초래하였다. 앞으로 3-색 3-단계 광이온화 구도로 전환시킬 경우 낮은 레이저세기에서도 충분한 이온화 효율을 유지시켜서 레이저 세기에 의한 선풍증가 효과를 최소화할 것이므로 동위원소 선택성을 보다 개선시킬 수 있으리라 전망한다.

참 고 문 헌

- [1] M. A. Akerman in "Dye Laser Principles with Applications," edited by F. I. Duarte and Lloyd W. Hillman (Academic Press, Inc. San Diego, 1990), p. 413.
- [2] V. S. Lektokhov, "Laser Photoionization Spectroscopy", (Academic Press, Inc., Orlando, 1987), p. 251.
- [3] C. Tai and F. W. Dalby, Can. J. Phys. **55**, 434 (1977).
- [4] F. W. Dalby and J. H. Sanders, Opt. Commun. **37**, 261 (1981).
- [5] A. W. Miziolek, Anal. Chem. **53**, 118 (1981).
- [6] B. A. Bushaw, Anal. Chem., **57**, 2397 (1985).
- [7] P. Dyer and G. C. Baldwin, Appl. Phys. Lett. **42**, 311 (1983).
- [8] P. Dyer, G. C. Baldwin, A. M. Sabbas, C. Kittel, Eric L. Schweitzer, E. Abramson and Dan G. Imre, J. Appl. Phys. **58**, 2431 (1985).
- [9] B. P. Turner, W. T. Hill, S. Yang, J. Zhu, A. Pinkas and L. Bao, Rev. Sci. Instrum. **61**, 1182 (1990).
- [10] J. K. Crane, G. V. Erbert, J. A. Paisner, H. L. Chen, Z. Chiba, R. G. Beeler, R. Combs and S. D. Mostek, UCRL-94164 (1986).
- [11] E. B. Saloman, Spectrochimica Acta. **46B**, 319 (1991).
- [12] V. S. Letokhov and V. P. Chebotayev, "Nonlinear Laser Spectroscopy", (Springer-Verlag Berlin Heidelberg, New York, 1977), p. 13.
- [1] M. A. Akerman in "Dye Laser Principles with Applications," edited by F. I. Duarte and Lloyd W. Hillman (Academic Press, Inc. San Diego,

A Study of 2-color 3-step Selective Photoionization for Mercury Atoms

Sipyu Rho, Jaemin Han, Doyoung Jeong, Hyungki Cha and Jongmin Lee

*Atomic Spectroscopy Dept., Korea Atomic Energy Research Institute
P.O. Box 7, Taedok Science Town, Taejon 305-606*

(Received: February 8, 1992)

2-color 3-step resonance photoionization scheme has been used for selective photoionization of mercury isotopes. The levels of 6^1P_1 and 6^1D_2 were selected as intermediate excited levels, and the laser wavelengths used were 253.7 nm for the first excitation and 313.2 nm for the second excitation and ionization. Selective excitation for individual isotope was realized in the first excitation step with a single-longitudinal-mode (SLM) dye laser of ~ 700 MHz linewidth. For the second excitation and ionization step, a dye laser with relatively large linewidth of ~ 5 GHz was used. In this work the effect of laser intensities on isotope selectivity was analyzed from the mass spectra obtained in real time from the time-of-flight mass spectrometer.