05

Оптимизация параметров лазерного излучения при фотоионизационном выделении изотопа ^{176}Lu

© А.Б. Дьячков, А.А. Горкунов, С.К. Ковалевич, А.В. Лабозин, С.М. Миронов, В.А. Фирсов, С.В. Фомичев, Г.О. Цветков¶, В.Я. Панченко

Национальный исследовательский центр „Курчатовский институт“,
Москва, Россия

¶e-mail: Tsvetkov_GO@nrcki.ru

Поступила в редакцию 16.04.2026 г.
В окончательной редакции 09.07.2026 г.
Принята к публикации 09.07.2026 г.

Проведено сравнение результатов экспериментального исследования влияния эффекта Доплера на эффективность и селективность фотоионизации с использованием трехступенчатой схемы фотоионизации лютеция $5d6s^2\ ^2D_{3/2}-5d6s6p\ ^4F^{\circ}_{5/2}-5d6s7s\ ^4D_{3/2}-(53375\,\mathrm{cm}^{-1})^{\circ}_{1/2}$ с расчетом на основе аппарата матрицы плотности.

Ключевые слова: лазерная селективная фотоионизация атомов, лазерное разделение изотопов, изотопы лютеция.

DOI: 10.61011/OS.2026.10.63939.9462-26

1. Введение

Лазерное фотоионизационное выделение изотопов лютеция (метод AVLIS) в перспективе позволяет существенно повысить эффективность технологии получения радионуклида ^{177}Lu для медицинского применения. Разработанная трехступенчатая схема фотоионизации $5d6s^2\ ^2D_{3/2}-5d6s6p\ ^4F^{\circ}_{5/2}-5d6s7s\ ^4D_{3/2}-(53375\,\mathrm{cm}^{-1})^{\circ}_{1/2}$ позволяет достигать высокой селективности и эффективности при выделении радионуклида ^{177}Lu из облученной смеси, а также при выделении изомера ^{177m}Lu для создания автономного внутрибольничного генератора ^{177}Lu [1–3].

Суть лазерного фотоионизационного выделения состоит в том, что создаваемый в вакууме поток атомов исходного вещества проходит через зону, заполненную лазерным излучением, в которой происходит селективная фотоионизация целевого изотопа. Образованные фотоионы целевого изотопа вытягиваются электрическим полем на коллектор продукта, в то время как атомы других изотопов, оставаясь нейтральными, продолжают свой путь, не меняя траектории, прямо на коллектор отвала. Развитие промышленной технологии лазерного фотоионизационного выделения требует всесторонней оптимизации параметров лазерного излучения во взаимосвязи с параметрами атомного потока, принимая во внимание высокую радиоактивность исходного вещества. В этом контексте ключевое значение приобретает выбор размера и расходимости атомного потока. Увеличение угла расходимости атомного пучка позволяет существенно повышать производительность единицы оборудования, однако при этом (вследствие эффекта Доплера) снижается эффективность и селективность фотоионизации, усложняется оптическая многопроходная система, обеспечивающая равномерное облучение атомного потока, и значительно увеличивается размер зоны отвала, затрудняя его сбор и утилизацию.

Первым этапом к решению задачи оптимизации является определение, как именно влияет угол расходимости атомного пучка на селективность и эффективность фотоионизации. Первым шагом на этом этапе является экспериментальное исследование влияния эффекта Доплера на селективность и эффективность фотоионизации изотопа ^{176}Lu из природной смеси изотопов ^{176}Lu и ^{175}Lu, представленное в работе [4]. Естественным следующим шагом является разработка адекватной методики, позволяющей рассчитывать результат фотоионизации при различных углах пересечения атомов и лазерного излучения с целью ее дальнейшего развития для моделирования результатов селективной фотоионизации при выделении радионуклидов ^{177}Lu и ^{177m}Lu из облученного материала.

Основная идея эксперимента по исследованию влияния эффекта Доплера [4] заключается в том, чтобы при сохранении ортогональности пересечения атомного и лазерного пучков моделировать отклонение атомов отстройками частоты лазерного излучения от резонанса. Пересечение пучка атомов с лазерным лучом осуществлялось непосредственно в источнике ионов квадрупольного масс-спектрометра, что позволяло одновременно измерять количество образованных фотоионов и их изотопный состав. В эксперименте использовалось излучение импульсных одномодовых лазеров на красителях, накачиваемых лазерами на парах меди, спектральная ширина лазерного излучения 150 MHz ($0.0050\,\mathrm{cm}^{-1}$), длительность импульса 20 ns, частота повторения импульсов 10 kHz. В табл. 1 представлены результаты измерения величины сигнала фотоионов целевого изотопа ^{176}Lu

Таблица 1. Результаты эксперимента [4]

Угол θ, degrees	$P_1 = 35\,\mathrm{mW/cm^2}$; $P_2 = 22\,\mathrm{mW/cm^2}$; $P_3 = 2.25\,\mathrm{W/cm^2}$		$P_1 = 68\,\mathrm{mW/cm^2}$; $P_2 = 26\,\mathrm{mW/cm^2}$; $P_3 = 2.25\,\mathrm{W/cm^2}$	
	Сигнал ^{176}Lu, arb. units	Концентрация ^{176}Lu	Сигнал ^{176}Lu, arb. units	Концентрация ^{176}Lu
−30			0.019	0.74
−25	0.006	0.76	0.05	0.87
−20	0.03	0.84	0.15	0.93
−15	0.10	0.95	0.31	0.91
−10	0.27	0.98	0.53	0.93
−5	0.45	0.993	0.66	0.991
0	0.60	0.995	0.75	0.992
5	0.55	0.990	0.78	0.990
10	0.43	0.98	0.64	0.97
15	0.16	0.96	0.42	0.96
20	0.03	0.92	0.18	0.88
25	0.007	0.66	0.04	0.73
30			0.004	0.17

и концентрации целевого изотопа в ансамбле фотоионов при различных отстройках длин волн лазерного излучения, соответствующих углу отклонения атомов от перпендикуляра. Фотоионизация осуществлялась с использованием наиболее эффективного и селективного канала (сочетания квантовых чисел полного момента F) 8.5-9.5-8.5-7.5. Исследование проведено для двух наборов интенсивности лазерного излучения. Первый набор соответствовал средним плотностям мощности $35\,\mathrm{mW/cm^2}$, $22\,\mathrm{mW/cm^2}$ и $2.25\,\mathrm{W/cm^2}$ (средние интенсивности, принимая во внимание соотношение длительности и частоты следования импульсов, $175\,\mathrm{W/cm^2}$, $110\,\mathrm{W/cm^2}$ и $11.25\,\mathrm{kW/cm^2}$) на первой, второй и третьей ступенях фотоионизации соответственно. В этом исследовании авторов также интересовала возможность расширения спектрального контура взаимодействия атомов с лазерным излучением за счет полевого уширения для работы с более широкими атомными потоками, поэтому второй набор отличался от первого в сторону увеличения интенсивности, а именно, средние плотности мощности на первой, второй и третьей ступенях составляли $68\,\mathrm{mW/cm^2}$, $26\,\mathrm{mW/cm^2}$ и $2.25\,\mathrm{W/cm^2}$ соответственно (средние интенсивности $340\,\mathrm{W/cm^2}$, $130\,\mathrm{W/cm^2}$ и $11.25\,\mathrm{kW/cm^2}$).

В табл. 2 представлены значения длин волн первой, второй и третьей ступеней, соответствующих углу отклонения атомов. Значения длин волн вычислялись по формуле

$$\lambda = \frac{\lambda_0}{\left(1 - \frac{v \sin\theta}{c}\right)}, \qquad (1)$$

где θ — угол отклонения траектории атома от перпендикуляра к направлению лазерного луча, λ_0 — длина волны, соответствующая резонансу при перпендикулярном пересечении пучка ($\theta = 0$), v — скорость атома и c — скорость света. При вычислении длин волн в табл. 2

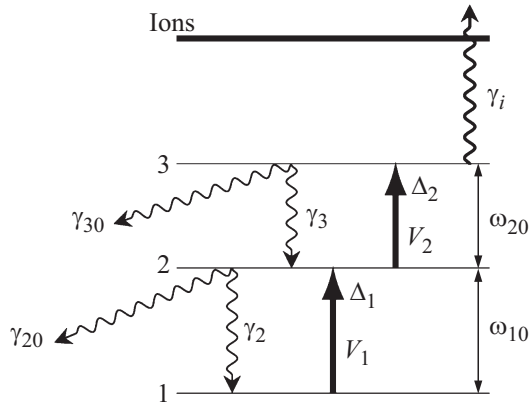


Рис. 1. Упрощенная схема трехступенчатой ионизации атома лютеция, соответствующая расчетной модели и уравнениям (2)−(8).

использовалось значение скорости атомов ^{176}Lu 492 m/s, которая реализуется при температуре испарения 1700 K. При использовании температуры, большей чем 1700 K, скорость движения атома возрастает, однако наборы длин волн из табл. 2 по-прежнему будут отражать воспринимаемые атомом наборы частот, но при меньших углах. Например, угол отклонения в 30° при температуре 1700 K (средняя скорость атома ~ 490 m/s) соответствует углу 27.4° при температуре 2000 K (средняя скорость атома ~ 530 m/s) и углу 25.5° при температуре 2300 K (средняя скорость атома ~ 570 m/s).

Теоретическое моделирование результатов эксперимента

Для теоретического моделирования результатов проведенных экспериментов была использована упрощен-

Таблица 2. Зависимость длин волн первой, второй и третьей ступеней фотоионизации изотопа ^{176}Lu по каналу 8.5−9.5−8.5−7.5 от угла θ при средней скорости 492 m/s (температура испарения 1700 K) [4]

Угол θ, degrees	Длина волны первой ступени, Å	Длина волны второй ступени, Å	Длина волны третьей ступени, Å
−30	5403.9616	5350.6522	6180.1218
−25	5403.9623	5350.6529	6180.1226
−20	5403.9630	5350.6536	6180.1234
−15	5403.9637	5350.6543	6180.1243
−10	5403.9645	5350.6551	6180.1251
−5	5403.9652	5350.6558	6180.1260
0	5403.9660	5350.6566	6180.1269
5	5403.9668	5350.6574	6180.1278
10	5403.9675	5350.6581	6180.1287
15	5403.9683	5350.6589	6180.1295
20	5403.9690	5350.6596	6180.1304
25	5403.9697	5350.6603	6180.1312
30	5403.9704	5350.6610	6180.1320

ная модель трехступенчатой ионизации атома лютеция, схематически представленная на рис. 1, в которой на атомную систему одновременно воздействует резонансное лазерное излучение первой и второй ступеней и ионизирующее излучение третьей ступени.

Возбуждение и последующая ионизация атома в этой модели может быть описана следующей стандартной системой уравнений для матрицы плотности трехуровневого атома ρ_{ij} $(i, j = 1, 2, 3)$ [5–8]:

$$i\frac{\partial\rho_{11}}{\partial t} = -\frac{\Omega_1^*}{2}\rho_{21} + \frac{\Omega_1}{2}\rho_{12} + i\gamma_2\rho_{22}, \tag{2}$$

$$i\frac{\partial\rho_{22}}{\partial t} = -\frac{\Omega_1}{2}\rho_{12} + \frac{\Omega_1^*}{2}\rho_{21} - \frac{\Omega_2^*}{2}\rho_{32} + \frac{\Omega_2}{2}\rho_{23} - i(\gamma_2 + \gamma_{20})\rho_{22} + i\gamma_3\rho_{33}, \tag{3}$$

$$i\frac{\partial\rho_{33}}{\partial t} = -\frac{\Omega_2}{2}\rho_{23} + \frac{\Omega_2^*}{2}\rho_{32} - i(\gamma_3 + \gamma_{30} + \gamma_i)\rho_{33}, \tag{4}$$

$$i\frac{\partial\rho_{21}}{\partial t} = -\left(\Delta_1 + \frac{i}{2}(\gamma_2 + \gamma_{20})\right)\rho_{21} - \frac{\Omega_1}{2}(\rho_{11} - \rho_{22}) - \frac{\Omega_2^*}{2}\rho_{31}, \tag{5}$$

$$i\frac{\partial\rho_{32}}{\partial t} = -\left(\Delta_2 + \frac{i}{2}(\gamma_2 + \gamma_{20} + \gamma_3 + \gamma_{30} + \gamma_i)\right)\rho_{32} - \frac{\Omega_2}{2}(\rho_{22} - \rho_{33}) + \frac{\Omega_1^*}{2}\rho_{31}, \tag{6}$$

$$\frac{\partial\rho_{31}}{\partial t} = -\left(\Delta_1 + \Delta_2 + \frac{i}{2}(\gamma_3 + \gamma_{30} + \gamma_1)\right)\rho_{31} - \frac{\Omega_2}{2}\rho_{21} + \frac{\Omega_1}{2}\rho_{32}, \tag{7}$$

$$\frac{\partial\rho_i}{\partial t} = \gamma_i\rho_{33}. \tag{8}$$

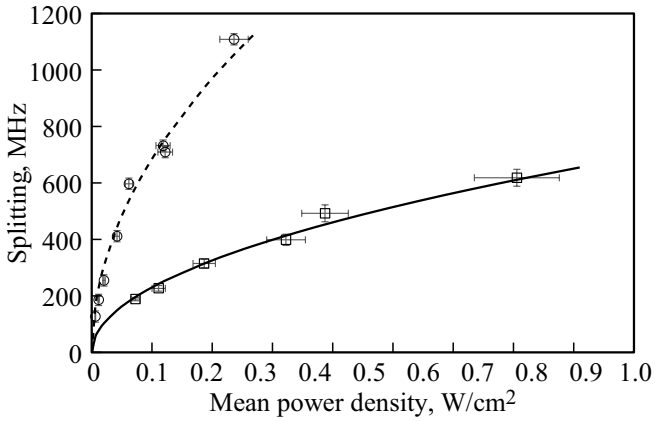


Рис. 2. Зависимость расщепления перехода от средней плотности мощности лазерного излучения [9]. Квадраты и сплошная линия — первый переход. Круги и штриховая линия — второй переход.

Здесь в последнем уравнении ρ_i есть искомая степень ионизации атома третьей ступенью со скоростью фотоионизации $\gamma_i = 1/\tau_i$ после его возбуждения двумя лазерными импульсами, и уравнения для элементов матрицы плотности ρ_{12}, ρ_{23}, и ρ_{13} являются уравнениями, комплексно-сопряженными к уравнениям (5), (6) и (7) соответственно. Начальными условиями при решении этой системы уравнений в момент времени $t = 0$ являлись значение $\rho_{11}(t = 0) = 1$ и нулевые начальные значения для всех остальных элементов матрицы плотности, а также величины ρ_i.

В этих уравнениях $\gamma_2 = 1/\tau_2$ и $\gamma_3 = 1/\tau_3$ обозначают обратные времена жизни первого и второго возбужденных состояний атома лютеция (уровней 2 и 3 схемы фотоионизации на рис. 1) по отношению к распадам в состояния, входящие в схему фотоионизации. В результате таких переходов атомы остаются в схеме фотоио-

низации и могут быть возбуждены повторно. Величины $\gamma_{20} = 1/\tau_{20}$ и $\gamma_{30} = 1/\tau_{30}$ обозначают обратные времена жизни по отношению к распаду в сторонние состояния, такие распады приводят к необратимым потерям атомов. Значения τ_2, τ_{20}, τ_3 и τ_{30} приняты одинаковыми для обоих изотопов ^{175}Lu и ^{176}Lu и равными $\tau_2 = 844$ ns, $\tau_{20} = 1071$ ns, $\tau_3 = 28$ ns и $\tau_{30} = 19.5$ ns в соответствии с результатами работы [9] по измерению соответствующих времен жизни.

С учетом доплеровских сдвигов значения отстроек Δ_1 и Δ_2 определяются по формулам

$$\Delta_1 = \omega_1 - \omega_{10} - \omega_1 \frac{v \sin\theta}{c}, \tag{9}$$

$$\Delta_2 = \omega_2 - \omega_{20} - \omega_2 \frac{v \sin\theta}{c}, \tag{10}$$

где ω_1 и ω_2 — угловые частоты лазерного излучения на первой и второй ступенях возбуждения, $\omega_{0k} = 2\pi\nu_{0k}$ $(k = 1, 2)$ — резонансные частоты атомных переходов со значениями

$$\frac{\nu_{01}}{c} = \frac{1}{5403.9660\,\text{Å}} = 18504.9277\,\text{cm}^{-1} \tag{11}$$

$$\frac{\nu_{02}}{c} = \frac{1}{5350.9566\,\text{Å}} = 18689.2951\,\text{cm}^{-1} \tag{12}$$

для изотопа ^{176}Lu и

$$\frac{\nu_{01}}{c} = \frac{1}{5403.9924\,\text{Å}} = 18504.8373\,\text{cm}^{-1} \tag{13}$$

$$\frac{\nu_{02}}{c} = \frac{1}{5350.6465\,\text{Å}} = 18689.3303\,\text{cm}^{-1} \tag{14}$$

для изотопа ^{175}Lu. При этом изотопические сдвиги для изотопа ^{175}Lu по отношению к изотопу ^{176}Lu на первой и второй ступенях возбуждения составляют соответственно -2710 MHz $(-0.0904\,\text{cm}^{-1})$ и 1058 MHz $(0.0353\,\text{cm}^{-1})$.

Входящие в уравнения (2)–(7) величины $\Omega_1 = 2\pi V_1$ и $\Omega_2 = 2\pi V_2$ являются усредненными по подуровням значениями угловых частот Раби резонансных переходов первой и второй ступеней возбуждения атомов лютеция, которые полагаются вещественными (вследствие линейной поляризации используемого в экспериментах лазерного излучения). Считая, что лазерное излучение представляет собой плоскую монохроматическую волну $E(t) = E_0 \cos\omega t$ с линейной поляризацией $(E_0 = \sqrt{8\pi I/c})$, получаем выражение для угловой частоты Раби

$$\hbar\Omega_{F\hat{F}} = |d_{F\hat{F}}|\sqrt{\frac{8\pi I}{c}}, \tag{15}$$

где $d_{F\hat{F}}$ — усредненный матричный элемент дипольного момента перехода между состояниями сверхтонкой структуры с квантовыми числами I, J, F, $M \to I, \hat{J}, \hat{F}, \hat{M}$ (проекция вектора дипольного момента на направление $\mathbf{E}_0$), I [W/cm^2] — интенсивность лазерного излучения. Матричный элемент $d_{F\hat{F}}$ выражается через приведенный матричный элемент $\langle J \parallel D \parallel \hat{J}\rangle$ по формуле [10]

$$d_{F\hat{F}} = (-1)^{F-M} \begin{pmatrix} F & 1 & \hat{F} \\ -M & 0 & \hat{M} \end{pmatrix} (-1)^{I+J+F+1} \times \sqrt{(2F+1)(2\hat{F}+1)} \begin{Bmatrix} J & 1 & \hat{J} \\ \hat{F} & I & F \end{Bmatrix} \langle J \parallel D \parallel \hat{J}\rangle, \tag{16}$$

где F и $\hat{F}$ — квантовые числа полного механического момента атома (ядра и электронов), $\hat{M}$ и M — их проекции, $\hat{J}$ и J — квантовые числа суммарного орбитального и спинового момента электронов, I — спин ядра. Элементы $\begin{pmatrix} F & 1 & \hat{F} \\ -M & 0 & \hat{M} \end{pmatrix}$ и $\begin{Bmatrix} J & 1 & \hat{J} \\ \hat{F} & I & F \end{Bmatrix}$ представляют собой $3j$- и $6j$-символы Вигнера соответственно [11]. В свою очередь приведенный дипольный момент $\langle J \parallel D \parallel \hat{J}\rangle$ выражается через характеристики перехода [10]:

$$|\langle J \parallel D \parallel \hat{J}\rangle|^2 = \frac{3\hbar\lambda^3(2\hat{J}+1)}{4 \cdot 8\pi^3} A(\hat{J} \to J), \tag{17}$$

где $A(\hat{J} \to J)$ — коэффициент Эйнштейна соответствующего перехода.

Особенностью используемой схемы фотоионизации $5d6s^2\,{}^2D_{3/2} - 5d6s6p\,{}^4F^{\circ}_{5/2} - 5d6s7s\,{}^4D_{3/2} - (53375\,\text{cm}^{-1})^{\circ}_{1/2}$ является тот факт, что первый переход является интеркомбинационным со сменой мультиплетности с 2 на 4. В работе [9] показано, что это приводит к противоречию между измеряемой зависимостью частоты Раби от интенсивности лазерного излучения и величиной коэффициента Эйнштейна перехода. Измеряемая с помощью эффекта Аутлера-Таунса частота Раби оказывается значительно меньше той, которая получается с использованием формул (15)–(17) для расчета усредненного матричного элемента дипольного момента перехода $d_{F\hat{F}}$. В связи с этим для определения значений частот Раби V_1 и V_2 (в MHz) использовались экспериментальные результаты исследования зависимости расщепления перехода при наблюдении эффекта Аутлера–Таунса от средней плотности мощности лазерного излучения (рис. 2), в этом состоит основное отличие настоящей работы от аналогичных расчетов, представленных в работах [12,13].

Зависимости частот Раби (величин расщепления) аппроксимировались формулой для первого перехода:

$$V_1[\text{MHz}] = 690\sqrt{P_1[\text{W/cm}^2]}, \tag{18}$$

где P_1 — средняя плотность мощности лазерного излучения первой ступени, и для второго перехода формулой

$$V_2[\text{MHz}] = 2060\sqrt{P_2[\text{W/cm}^2]}, \tag{19}$$

где P_2 — средняя плотность мощности лазерного излучения второй ступени.

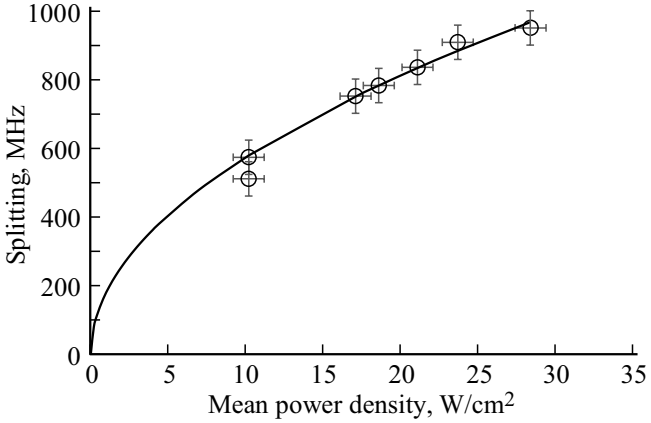


Рис. 3. Зависимость расщепления третьего перехода от средней плотности мощности лазерного излучения [4].

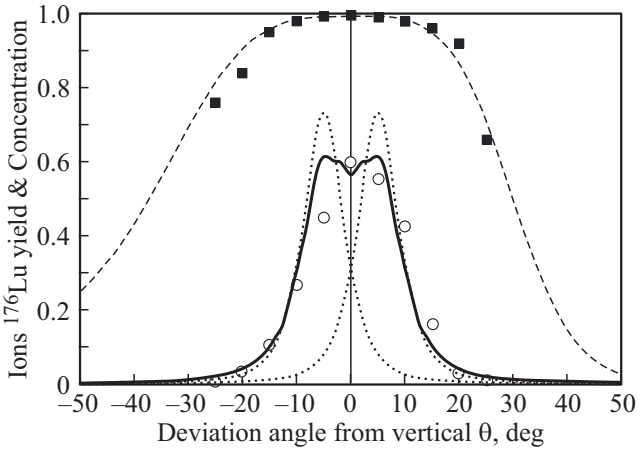


Рис. 4. Сравнение с расчетом экспериментальной зависимости относительного выхода целевого изотопа ^{176}Lu (светлые кружки) и его концентрации в ансамбле фотоионов C_{photo} (темные квадраты) от угла отклонения θ при средних плотностях мощности лазерного излучения на первом, втором и третьем переходах $P_1 = 35\,\text{mW/cm}^2$, $P_2 = 22\,\text{mW/cm}^2$ и $P_3 = 2.25\,\text{W/cm}^2$ соответственно. Расчет при частотах Раби $V_1 = 129\,\text{MHz}$, $V_2 = 306\,\text{MHz}$ и скорости фотоионизации $\gamma_i = 270\,\text{MHz}$. Пунктиром показаны сдвинутые по углу на $\pm 5^\circ$ результаты при $V_1 = V_2 = 129\,\text{MHz}$.

Аналогичным образом определяется ионизационная ширина верхнего возбужденного состояния γ_i (в MHz) на основе результатов экспериментального исследования [14] эффекта Аутлера–Таунса автоионизационного состояния $(53375\,\text{cm}^{-1})^{\circ}_{1/2}$ (рис. 3) с использованием формулы

$$\gamma_i[\text{MHz}] = 180\sqrt{P_3[\text{W/cm}^2]}, \qquad (20)$$

где P_3 — средняя плотность мощности лазерного излучения третьей ступени.

Далее следует принять во внимание, что экспериментальные результаты работ [9,14] получены для канала 2-1-2-3, что было связано с необходимостью минимизации ширин пиков, обусловленных различием

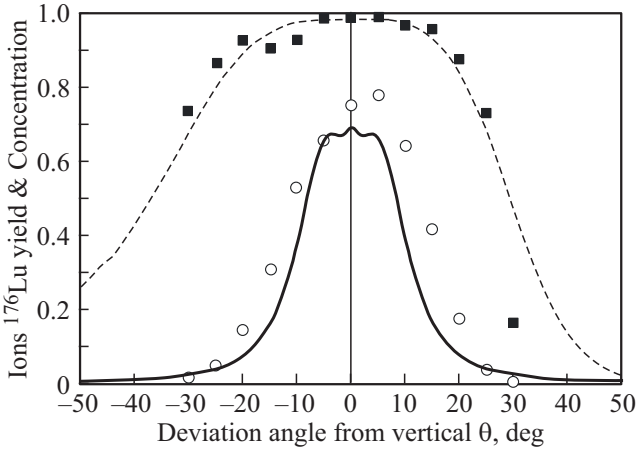


Рис. 5. Сравнение с расчетом экспериментальной зависимости относительного выхода целевого изотопа ^{176}Lu (светлые кружки) и его концентрации в ансамбле фотоионов C_{photo} (темные квадраты) от угла отклонения θ при средних плотностях мощности лазерного излучения на первом, втором и третьем переходах $P_1 = 68\,\text{mW/cm}^2$, $P_2 = 26\,\text{mW/cm}^2$ и $P_3 = 2.25\,\text{W/cm}^2$ соответственно. Расчет при частотах Раби $V_1 = 180\,\text{MHz}$, $V_2 = 332\,\text{MHz}$ и скорости фотоионизации $\gamma_i = 270\,\text{MHz}$.

$d_{F\hat{F}}$ из-за разных проекций M и $\hat{M}$. При разработке технологии выделения изотопов лютеция следует использовать каналы с максимальными значениями F для увеличения доли вовлекаемых в процесс атомов, поэтому экспериментальные исследования влияния эффекта Доплера в работе [4] проводились на канале 8.5-9.5-8.5-7.5 целевого изотопа ^{176}Lu, а ближайшим каналом фотоионизации нецелевого изотопа ^{175}Lu является канал 5-6-5-4. В табл. 3 представлены значения коэффициентов и множителей формулы (16), зависящие от квантовых чисел F и M. Из таблицы следует, что отличия усредненных по проекциям M значений сомножителей в формуле (16) для каналов 2-1-2-3, 5-6-5-4 и 8.5-9.5-8.5-7.5 не превышают 10 %, что позволяет использовать полученные частоты Раби по каналу 2-1-2-3 в качестве средних частот Раби при расчете фотоионизации каналов 8.5-9.5-8.5-7.5 для целевого изотопа ^{176}Lu и 5-6-5-4 для нецелевого изотопа ^{175}Lu. Окончательные значения частот, которые использовались для моделирования результатов экспериментов [4], представлены в табл. 4.

В ходе численного моделирования для каждого угла отклонения θ производилось вычисление ρ_i^{176} для целевого изотопа ^{176}Lu и ρ_i^{175} для нецелевого изотопа ^{175}Lu. Концентрация целевого изотопа в ансамбле фотоионов вычислялась по формуле

$$C_{photo} = \frac{0.0259\rho_i^{176}}{0.0259\rho_i^{176} + 0.9741\rho_i^{175}}, \qquad (21)$$

где 0.0259 и 0.9741 — природные концентрации изотопов ^{176}Lu и ^{175}Lu соответственно. Расчет производился для трех прямоугольных синхронизованных лазерных

Таблица 3. Значения квантовых чисел, коэффициентов и сомножителей формулы (16)

Переход		2–1	5–6	8.5–9.5	2–3	5–4	8.5–7.5
	J	1.5	1.5	1.5	1.5	1.5	1.5
	$\hat{J}$	2.5	2.5	2.5	0.5	0.5	0.5
	I	3.5	3.5	7	3.5	3.5	7
	F	2	5	8.5	2	5	8.5
	$\hat{F}$	1	6	9.5	3	4	7.5
	$6j$	0.183	0.123	0.096	0.189	0.167	0.125
$3j$	$M = \hat{M} = 0$ (0.5)	0.365	0.205	0.162	0.293	0.225	0.171
	$M = \hat{M} = 1$ (1.5)	0.316	0.202	0.160	0.276	0.226	0.169
	$M = \hat{M} = 2$ (2.5)		0.193	0.157	0.218	0.212	0.164
	$M = \hat{M} = 3$ (3.5)		0.177	0.151		0.180	0.157
	$M = \hat{M} = 4$ (4.5)		0.153	0.143		0.135	0.146
	$M = \hat{M} = 5$ (5.5)		0.113	0.132			0.131
	$M = \hat{M} = 6$ (6.5)			0.100			0.111
	$M = \hat{M} = 7$ (7.5)			0.073			0.81
	$\langle 3j \rangle$	0.333	0.171	0.135	0.256	0.192	0.141
	$\sqrt{(2F+1)(2\hat{F}+1)}$	3.87	12.0	17.97	5.916	9.95	16.971
	$\left\langle \frac{d_{F\hat{F}}}{\langle J\|\|D\|\|J\rangle} \right\rangle$	0.24	0.25	0.23	0.29	0.32	0.30

Таблица 4. Значения частот, использовавшихся для моделирования экспериментальных результатов

		Средняя плотность мощности, W/cm^2	Интенсивность, W/cm^2	Частота, MHz
Набор 1	Переход 1	0.035	175	$V_1 = 129$
	Переход 2	0.022	110	$V_2 = 306$
	Переход 3	2.25	11250	$\gamma_i = 270$ ($\tau_i = 3.7$ ns)
Набор 2	1 переход	0.068	340	$V_1 = 180$
	2 переход	0.026	130	$V_2 = 332$
	3 переход	2.25	11250	$\gamma_i = 270$ ($\tau_i = 3.7$ ns)

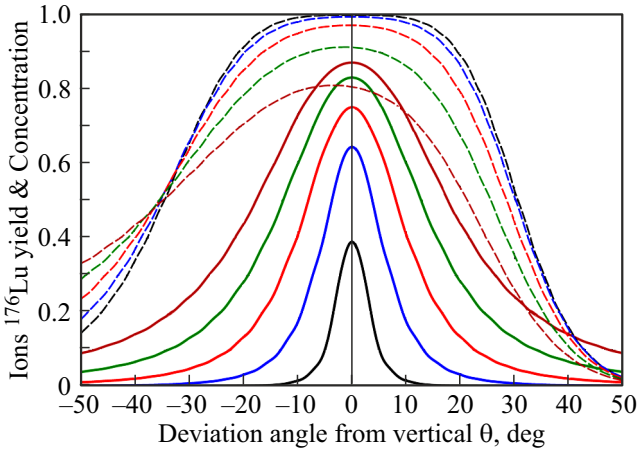


Рис. 6. Результаты расчета зависимости относительного выхода целевого изотопа ^{176}Lu (сплошные линии, снизу вверх от 100 до 500 MHz) и его концентрации в ансамбле фотоионов C_{photo} при фотоионизации природной смеси (штриховые линии, сверху вниз от 100 до 500 MHz) от угла отклонения θ при частотах Раби $V_1 = V_2 = 100$ MHz (черные линии), 200 MHz (синие линии), 300 MHz (красные линии), 400 MHz (зеленые линии) и 500 MHz (коричневые линии) при соответствующих скоростях фотоионизации: $\gamma_i = 100 \cdot 10^6$ 1/s, $200 \cdot 10^6$ 1/s, $300 \cdot 10^6$ 1/s, $400 \cdot 10^6$ 1/s, $500 \cdot 10^6$ 1/s.

импульсов первой, второй и третьей ступеней с одинаковой длительностью $\tau_{\text{pulse}} = 20$ ns.

На рис. 4 и 5 представлены результаты численного моделирования для первого и второго набора мощностей лазерного излучения.

Следует отметить, что используемая модель неплохо описывает экспериментальные результаты, особенно в части концентрации целевого изотопа в ансамбле фотоионов. Общие результаты теоретических исследований многоступенчатой когерентной фотоионизации говорят о том, что наиболее эффективно фотоионизация идет, когда частоты Раби на всех переходах приблизительно равны, а точнее, когда частота Раби на каждом последующем переходе немного превышает частоту Раби на предыдущем переходе. В случае первого набора интенсивностей лазерного излучения частота Раби на втором переходе оказывается более чем в 2 раза выше частоты Раби на первом переходе и приблизительно равна частоте фотоионизации. При этом, как следует из расчета, происходит расширение контура взаимодействия лазерного излучения с атомами, который можно представить как сумму пиков, сдвинутых вправо и влево по шкале угла, так что расстояние между пиками приблизительно соответствует частоте Раби на втором переходе, а ширина каждого пика соответствует частоте

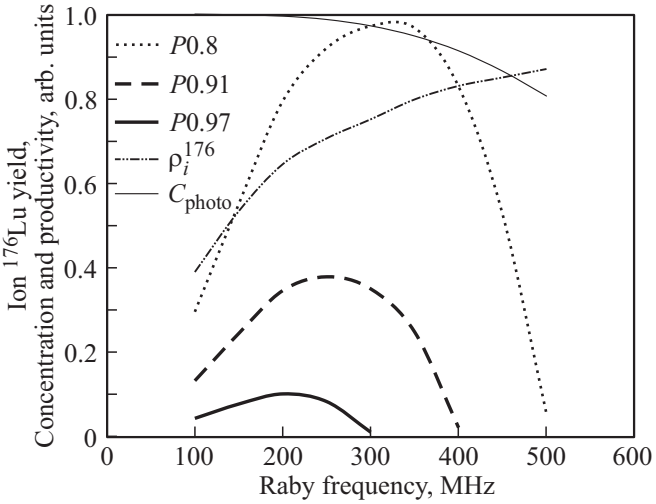


Рис. 7. Значения выхода целевого изотопа ρ_i^{176} и концентрации C_{photo} целевого изотопа ^{176}Lu при равных частотах Раби $V_1 = V_2 = \gamma_i$ и нулевом угле θ отклонения атомов (штрихпунктирная и сплошная тонкая линии соответственно). Расчет производительности с заданной концентрацией целевого изотопа ^{176}Lu $C_p = 0.8$; 0.91; 0.97 в зависимости от частоты Раби, с использованием выражений (22) и (23) для производительности продукта с заданной концентрацией целевого изотопа C_p (пунктирная, штриховая и сплошная толстая линии).

Раби на первом переходе. Это позволяет достигать более однородных условий для фотоионизации атомов, чей угол отклонения не превышает 10° и быстрый спад контура взаимодействия для атомов с углом отклонения выше 10°.

Представленная методика позволяет осуществлять оптимизацию параметров лазерного излучения при разработке технологии фотоионизационного выделения изотопов лютеция. Как правило, наиболее востребованным критерием оптимизации является максимальная производительность продукта с заданной концентрацией целевого изотопа C_p. В работе [15] показано, что производительность ячейки разделения, продукт которой состоит из потока фотоионов и потока нейтральных атомов, рассеянных в результате столкновений в рабочем объеме, оказывается пропорциональной

$$P_{C_p} \sim k_{ex}^2 \frac{(C_{\text{photo}} - C_p)(C_{\text{photo}} - C_F)}{C_{\text{photo}}^2}, \qquad (22)$$

где C_F — исходная концентрация целевого изотопа, k_{ex} — коэффициент извлечения целевого изотопа за счет фотоионизации, который в нашем случае может считаться пропорциональным ρ_i^{176}:

$$k_{ex} \sim \rho_i^{176}. \qquad (23)$$

На рис. 6 представлено семейство кривых выхода фотоионов целевого изотопа и его концентрации при равных частотах Раби и соответствующей ей частоте фотоионизации. На рис. 7 представлена зависимость производительности ячейки по продукту с заданной концентрацией от частоты Раби для атомов, летящих строго по оси потока (угол $\theta = 0$). Из рисунка видно, что чем выше заданная концентрация продукта C_p, тем ниже частота Раби, соответствующая максимуму производительности. Нетрудно видеть, что подобные расчеты можно сделать для любых потоков с заданным распределением атомов по углу пролета зоны лазерного облучения.

На рис. 8 представлены результаты селективной фотоионизации радиоизотопа ^{177}Lu из облученной природной смеси, начальная концентрация радионуклида C_F составляла $(3.4 \pm 0.4) \cdot 10^{-5}$.

На рис. 9 представлены результаты расчета селективной фотоионизации ^{177}Lu при параметрах лазерного излучения, соответствующих эксперименту. При вычислении выхода фотоионов ^{177}Lu использовались значения

$$\frac{\nu_{01}}{c} = \frac{1}{5404.0040\,\text{Å}} = 18504.7976\,\text{cm}^{-1}, \qquad (24)$$

$$\frac{\nu_{02}}{c} = \frac{1}{5350.6409\,\text{Å}} = 18689.3499\,\text{cm}^{-1}. \qquad (25)$$

Изотопические сдвиги для изотопа ^{175}Lu по отношению к изотопу ^{177}Lu на первой и второй ступенях возбуждения составляют соответственно 1190 MHz ($0.0397\,\text{cm}^{-1}$) и -588 MHz ($-0.0196\,\text{cm}^{-1}$). Единственным нецелевым изотопом учитывался ^{175}Lu с параметрами, указанными в (13) и (14).

При сравнении с экспериментом видно, что с увеличением интенсивности лазерного излучения выход фотоионов для атомов ^{177}Lu, летящих под углом $\theta = 0$, практически не меняется, что соответствует эксперименту, принимая во внимание, что последний выполнялся с узким атомным пучком с углом расходимости менее 1°. При меньшей интенсивности лазерного излучения расчетная концентрация ^{177}Lu составляет около 76 %, что находится в хорошем согласии с экспериментом. При более высокой интенсивности расчетная концентрация составляет 63 % и оказывается несколько выше экспериментального значения 54 %.

Обращает на себя внимание несимметричность зависимости концентрации целевого изотопа от угла θ. При фотоионизации ^{176}Lu концентрация целевого изотопа быстрее уменьшается при положительных углах, в то время как при фотоионизации ^{177}Lu, наоборот, концентрация снижается быстрее в области отрицательных углов. Это связано с тем, что при изменении отстроек длины волн лазерного излучения в обоих случаях приближаются к условиям двухфотонного возбуждения изотопа ^{175}Lu. Различие заключается в том, что первый переход ^{176}Lu оказывается смещенным в сторону больших частот относительно ^{175}Lu, а переход ^{177}Lu — в сторону меньших частот. Все это указывает на то, что двухфотонные переходы нецелевого изотопа являются важным фактором, влияющим на селективность фотоионизации.

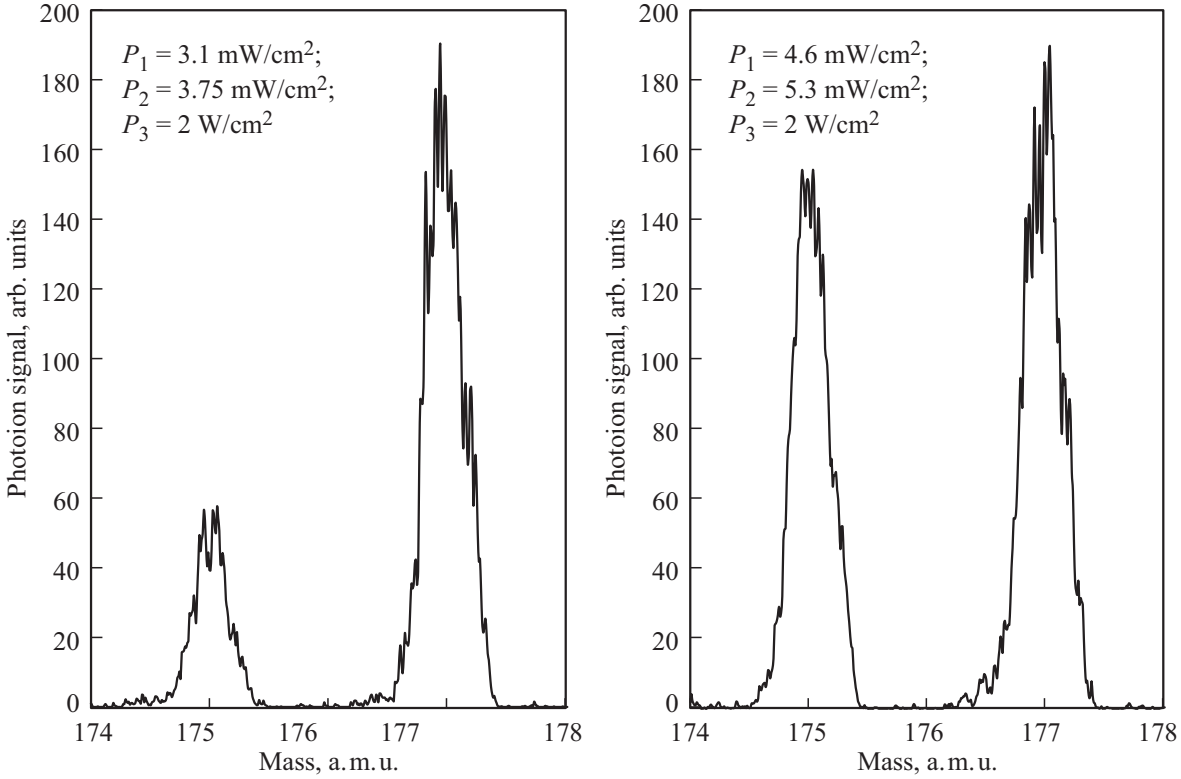


Рис. 8. Масс-спектры фотоионизации ^{177}Lu по каналу 5-6-5-4 в совмещенных импульсах при различных средних плотностях мощности лазерного излучения на первой и второй ступенях. Слева — средняя плотность мощности на первой и второй ступенях 3.1 mW/cm^2 и 3.75 mW/cm^2 соответственно, концентрация ^{177}Lu 73 %. Справа средняя плотность мощности на первой и второй ступенях 4.6 mW/cm^2 и 5.3 mW/cm^2 соответственно, концентрация ^{177}Lu 54 %. Исходная концентрация ^{177}Lu — $(3.4 \pm 0.4) \cdot 10^{-5}$.

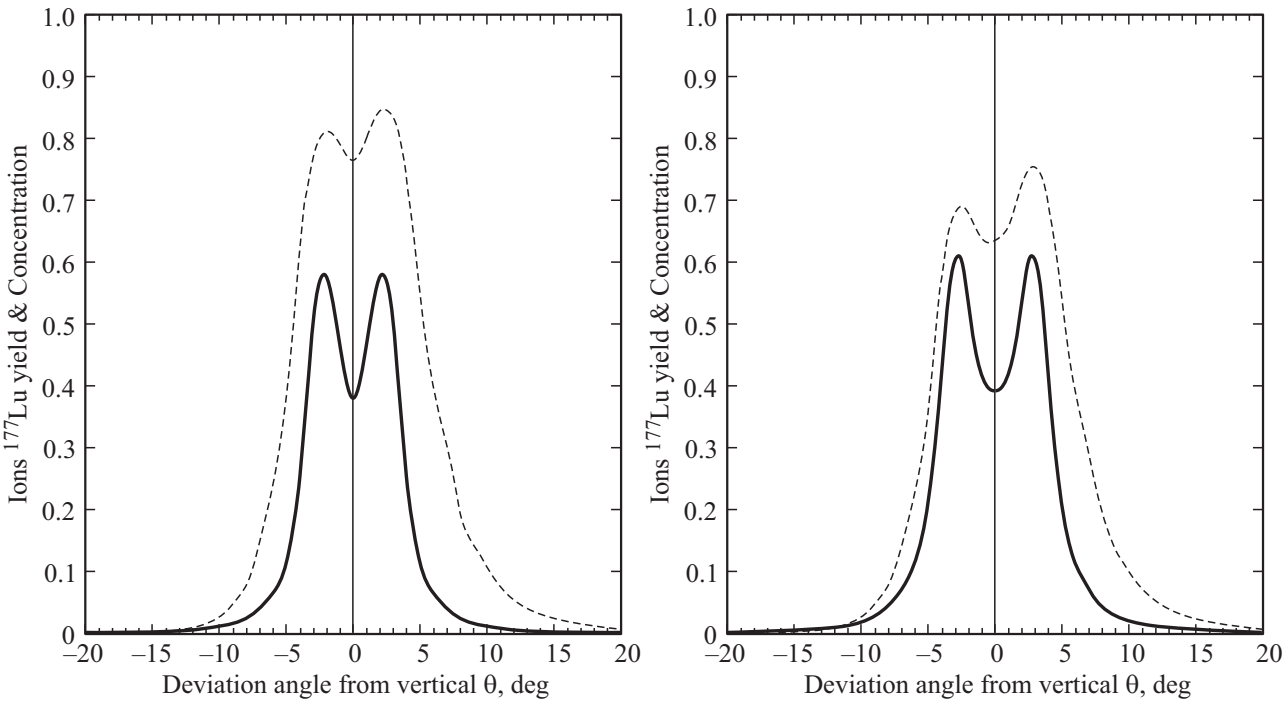


Рис. 9. Результаты расчета зависимости относительного выхода целевого изотопа ^{177}Lu (сплошные линии) и его концентрации в ансамбле фотоионов C_{photo} (штриховые линии) при фотоионизации облученной в реакторе природной смеси с начальной концентрацией ^{177}Lu $3.4 \cdot 10^{-5}$ от угла отклонения θ. Слева — при частотах Раби $V_1 = 40$ MHz, $V_2 = 126$ MHz, $\gamma_i = 255 \cdot 10^6$ 1/s. Справа — при частотах Раби $V_1 = 47$ MHz, $V_2 = 150$ MHz, $\gamma_i = 255 \cdot 10^6$ 1/s.

Выводы

Таким образом, на основе аппарата матрицы плотности создана методика расчета коэффициента извлечения целевого изотопа и его концентрации в ансамбле фотоионов при лазерном фотоионизационном извлечении изотопа ^{176}Lu из природной смеси с использованием трехступенчатой схемы $5d6s^2\ {}^2D_{3/2} - 5d6s6p\ {}^4F^{\circ}_{5/2} - 5d6s7s\ {}^4D_{3/2} - (53375\,\mathrm{cm}^{-1})^{\circ}_{1/2}$. Результаты расчета находятся в хорошем согласии с экспериментом, особенно в части концентрации целевого изотопа. Наблюдается небольшое расхождение в зависимости эффективности фотоионизации целевого изотопа от угла отклонения атома от оси. Расчет показывает более быстрое уменьшение фотоионизации с увеличением угла отклонения, чем в эксперименте при увеличенных интенсивностях на первой и второй ступени фотоионизации.

Расчет позволяет объяснить ранее замеченный экспериментальный факт, что увеличение интенсивности лазерного излучения на второй ступени способствует заметному увеличению фотоионного тока при работе с расходящимися потоками при незначительном снижении селективности. Вычисления показывают, что это происходит за счет расширения контура взаимодействия лазерного излучения с атомами в условиях увеличенной частоты Раби на втором переходе.

Разработанная расчетная методика может быть использована для оптимизации интенсивностей лазерного излучения при разработке технологии фотоионизационного выделения изотопов лютеция.

Применение расчета к селективной фотоионизации ^{177}Lu показывает неплохое согласие с экспериментом. При выделении ^{177}Lu угол θ, при котором сохраняется значительный выход фотоионов и селективность фотоионизации, существенно сокращается по сравнению с фотоионизацией ^{176}Lu.

Финансирование работы

Работа проведена в рамках выполнения государственного задания НИЦ „Курчатовский институт“.

Конфликт интересов

Авторы заявляют, что у них нет конфликта интересов.

Список литературы

[1] А.Б. Дьячков, А.А. Горкунов, А.В. Лабозин, С.М. Миронов, В.А. Фирсов, Г.О. Цветков, В.Я. Панченко. УФН, **193** (5), 554–570 (2023). DOI: 10.33367/UFNr.2021.12.039140 [A.B. Dyachkov, A.A. Gorkunov, A.V. Labozin, S.M. Mironov, V.A. Firsov, G.O. Tsvetkov, V.Ya. Panchenko. Physics-Uspekhi, **66** (5), 518–533 (2023). DOI: 10.33367/UFNe.2021.12.039140].

[2] И.В. Агеева, А.Б. Дьячков, А.А. Горкунов, А.В. Лабозин, С.М. Миронов, В.Я. Панченко, В.А. Фирсов, Г.О. Цветков, Е.Г. Цветкова. Квант. электрон., **49** (9), 832 (2019) [I.V. Ageeva, A.B. D'yachkov, A.A. Gorkunov, A.V. Labozin, S.M. Mironov, V.Ya. Panchenko, V.A. Firsov, G.O. Tsvetkov, E.G. Tsvetkova. Quant. Electron., **49** (9), 832 (2019). DOI: 10.1070/QEL17049].

[3] А.Б. Дьячков, А.А. Горкунов, А.В. Лабозин, К.А. Маковеева, С.М. Миронов, В.А. Фирсов, Г.О. Цветков, В.Я. Панченко. Радиохимия, **64** (1), 65 (2022). DOI: 10.31857/S0033831122010063 [A.B. D'yachkov, A.A. Gorkunov, A.V. Labozin, K.A. Makoveeva, S.M. Mironov, V.A. Firsov, G.O. Tsvetkov, V.Ya. Panchenko. Radiochemistry, **64** (1), 49 (2022). DOI: 10.1134/S1066362222010088].

[4] А.Б. Дьячков, А.А. Горкунов, С.К. Ковалевич, А.В. Лабозин, С.М. Миронов, В.А. Фирсов, Г.О. Цветков, В.Я. Панченко. Опт. и спектр., **133** (12), 1334 (2025). DOI: 10.61011/OS.2025.12.62509.8323-25 [A.B. D'yachkov, A.A. Gorkunov, S.K. Kovalevich, A.V. Labozin, S.M. Mironov, V.A. Firsov, G.O. Tsvetkov, V.Ya. Panchenko. Opt. Spectrosc., **133** (12), (2025). DOI: 10.61011/OS.2025.12.62509.8323-25].

[5] С.Г. Раутиан, Г.И. Смирнов, А.М. Шалагин. *Нелинейные резонансы в спектрах атомов и молекул* (Наука, Новосибирск, 1979).

[6] B.W. Shore. *The Theory of Coherent Atomic Excitation* (Wiley-Interscience, New York, 1990).

[7] S.V. Fomichev. J. Phys. D: Appl. Phys, **26** (3), 349 (1993). DOI: 10.1088/0022-3727/26/3/002

[8] B.W. Shore. *Manipulating Quantum Structures Using Laser Pulses.* (Cambridge University Press, Cambridge, 2011). DOI: 10.1017/CBO9780511675713

[9] А.Б. Дьячков, А.А. Горкунов, А.В. Лабозин, С.М. Миронов, В.А. Фирсов, Г.О. Цветков, В.Я. Панченко. Квант. электрон., **52** (4), 367 (2022) [A.B. D'yachkov, A.A. Gorkunov, A.V. Labozin, S.M. Mironov, V.A. Firsov, G.O. Tsvetkov, V.Ya. Panchenko. Quant. Electron., **52** (4), 367 (2022). DOI: 10.1070/QEL18029].

[10] B. Shore. *Coherent Manipulations of Atoms Using Laser Light.* Acta Phys. Slovaca. Rev. Tutorials, **58** (3), 243–486 (2008).

[11] I.I. Sobel'man. *Introduction to the Theory of Atomic Spectra: International Series of Monographs in Natural Philosophy* (Elsevier, 2016), vol. 40.

[12] M.V. Suryanarayana. JOSA B, **38** (2), 353–370 (2021). DOI: 10.1364/JOSAB.409409

[13] Xiaoyong Lu, Lide Wang. Applied Radiation and Isotopes, **210**, 111334 (2024). DOI: 10.1016/j.apradiso.2024.111334

[14] А.Б. Дьячков, А.А. Горкунов, С.К. Ковалевич, А.В. Лабозин, В.А. Фирсов, С.В. Фомичев, Г.О. Цветков, В.Я. Панченко. Опт. и спектр., **131** (9), 1178 (2023). DOI: 10.61011/OS.2023.09.56603.5398-23 [A.B. D'yachkov, A.A. Gorkunov, S.K. Kovalevich, A.V. Labozin, V.A. Firsov, S.V. Fomichev, G.O. Tsvetkov, V.Ya. Panchenko. Opt. Spectrosc., **131** (9), 1119 (2023). DOI: 10.61011/EOS.2023.09.57338.5398-23].

[15] С.К. Ковалевич, В.П. Лабозин, Г.О. Цветков, ЖТФ, **75** (1), 98 (2005) [S.K. Kovalevich, V.P. Labozin, G.O. Tsvetkov. Tech. Phys., **50** (1), 96–103 (2005). DOI: 10.1134/1.1854830].