

# 01 Влияние поляризации лазерного излучения на эффективность фотоионизации лютеция

© А.Б. Дьячков, А.А. Горкунов, А.В. Лабозин, С.М. Миронов, В.А. Фирсов, Г.О. Цветков<sup>¶</sup>, В.Я. Панченко

Национальный исследовательский центр „Курчатовский институт“,  
123182 Москва, Россия

<sup>¶</sup> e-mail: Tsvetkov\_GO@nrcki.ru

Поступила в редакцию 14.12.2021 г.

В окончательной редакции 28.10.2022 г.

Принята к публикации 31.10.2022 г.

Исследовано влияние поляризации лазерного излучения на фотоионизацию лютеция с использованием трехступенчатой схемы  $5d6s^2D_{3/2} - 5d6s6p^4F_{5/2}^o - 5d6s7s^4D_{3/2} - (53375 \text{ cm}^{-1})_{1/2}^o$ . Показано, что в ряде случаев имеет место ограничение фотоионизации, связанное с особенностями когерентного фотовозбуждения.

**Ключевые слова:** лазерная селективная фотоионизация, лютеций-177.

DOI: 10.21883/OS.2022.12.54083.3034-22

## Введение

Трехступенчатая схема фотоионизации лютеция  $5d6s^2D_{3/2} - 5d6s6p^4F_{5/2}^o - 5d6s7s^4D_{3/2} - (53375 \text{ cm}^{-1})_{1/2}^o$  позволяет осуществлять фотоионизацию  $^{177}\text{Lu}$  и  $^{177m}\text{Lu}$  с высокой селективностью и эффективностью, что может быть использовано для промышленного получения данных радионуклидов для их медицинского применения [1]. Изотопы лютеция (кроме  $^{170}\text{Lu}$ ) имеют ненулевой спин ядра, поэтому все уровни энергии расщеплены в мультиплеты (рис. 1). Подуровни в мультиплетных определяются полным атомным моментом  $F = J + I, J + I - 1, \dots, |J - I|$ , где  $J$  — полный электронный момент атома,  $I$  — спин ядра. Разность частот возбуждения переходов между различными компонентами сверхтонкой структуры (СТС) ( $\Delta F = 0, \pm 1$ ) оказывается, как правило, существенно больше спектральной ширины лазерного излучения. Поэтому при определенной настройке длин волн лазеров фотоионизация осуществляется только по одному каналу — сочетанию компонент СТС ( $F$ ) основного, первого, второго возбужденных и автоионизационного состояний. Эффективность фотоионизации каждого канала формально ограничивается заселенностью стартовой компоненты основного состояния.

Например, при фотоионизации по каналу 5–6–5–4 стартовой компонентой является компонента с полным моментом атома  $F = 5$ . Заселенность этого состояния, пропорциональная статистическому весу  $2F + 1$ , составляет 0,34, что в сочетании с температурной заселенностью основного состояния 0,7 (при температуре испарения лютеция  $1700^\circ\text{C}$ ) дает ограничение на эффективность фотоионизации по данному каналу 0,24. Такое же ограничение имеет место для любого канала, стартовым состоянием для которого является компонента основного состояния, с  $F = 5$  (5–5–4–4, 5–5–5–4, 5–4–4–4 и т.д.). Это не означает, однако, что все эти каналы эквивалентны с точки зрения эффективности

фотоионизации. Разности частот поглощения различных изотопов лютеция составляют порядка 1 GHz, и для достижения высокой селективности фотоионизации требуется применение спектрально узких лазеров. В этом случае, например, при использовании импульсных одномодовых лазеров на красителях со спектральной шириной генерации 100–150 MHz наблюдаются явления, присущие когерентному процессу фотовозбуждения, когда формируются выраженные колебания населенностей с частотой Раби, превышающей естественные ширины исследуемых переходов. В частности, в работе [2] экспериментально изучается эффект Аутлера-Таунса, приводящий к расщеплению линий переходов. Исследование зависимости расщепления от интенсивности лазерного излучения позволяет уточнить характеристики распада уровней исследуемой схемы фотоионизации лютеция. Когерентные эффекты в ряде случаев могут приводить к дополнительному ограничению эффективности фотоионизации некоторых каналов.

## Расчет

Теоретический анализ когерентной фотоионизации по трехступенчатой схеме существенно упрощается при рассмотрении третьей ступени (автоионизации) как релаксации второго возбужденного состояния  $5d6s7s^4D_{3/2}$ . Такой подход с успехом применялся в работе [3], в нашем случае он позволяет получить необходимые результаты, не прибегая к сложным вычислениям. При таком подходе вероятность фотоионизации оказывается пропорциональной квазистационарной заселенности второго возбужденного состояния, которая формируется в результате одновременного воздействия на атом лазерного излучения первой и второй ступеней. Такие задачи теоретически рассматривались в работах [4–7]. Усредненная по осцилляциям Раби вероятность обнаружить атом во втором возбужденном

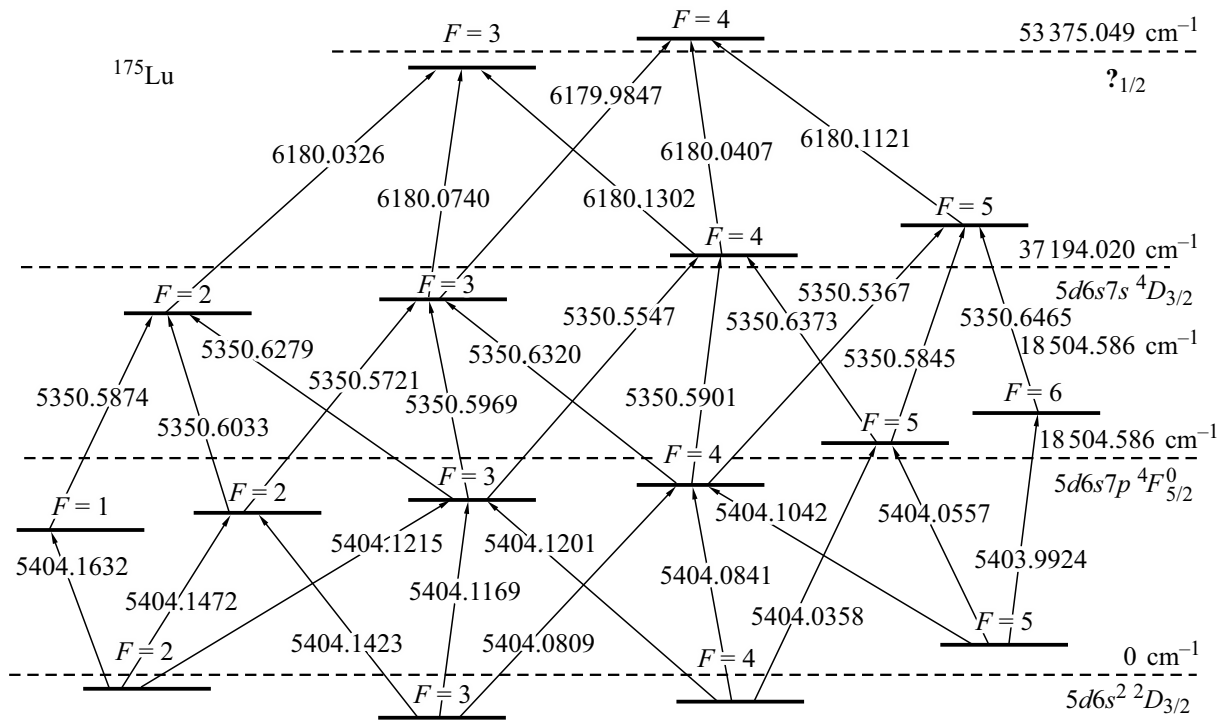


Рис. 1. Схема фотоионизации лютеция  $^{175}\text{Lu}$ .

состоянии описывается [5] формулой

$$W_2 = \frac{3}{2} \frac{\Omega_1^2 \Omega_2^2}{(\Omega_1^2 + \Omega_2^2)^2}, \quad (1)$$

где  $\Omega_1$  и  $\Omega_2$  — частоты Раби на первом и втором переходах. Для того, чтобы определить частоту Раби с учетом СТС, использовалась [8] формула

$$\hbar\Omega = |\mathbf{d}_{F\dot{F}} \mathbf{E}_0|, \quad (2)$$

где  $\mathbf{d}_{F\dot{F}}$  — оператор вектора дипольного момента перехода из состояния с квантовым числом полного механического момента  $\dot{F}$  в состояние  $F$ , а  $\mathbf{E}_0$  — вектор амплитуды электрического поля электромагнитной волны лазерного излучения. Матричный элемент дипольного момента перехода  $d_{F\dot{F}}$  между состояниями сверхтонкой структуры с квантовыми числами  $I, J, F, M \rightarrow I, \dot{J}, \dot{F}, \dot{M}$  выражается [7] через приведенный матричный элемент  $\langle J \parallel D \parallel \dot{J} \rangle$  по формуле

$$d_{F\dot{F}} = (-1)^{F-M} \begin{pmatrix} F & 1 & \dot{F} \\ -M & q & \dot{M} \end{pmatrix} (-1)^{I+J+F+1} \times \sqrt{(2F+1)(2\dot{F}+1)} \begin{Bmatrix} J & 1 & \dot{J} \\ \dot{F} & I & F \end{Bmatrix} \langle J \parallel D \parallel \dot{J} \rangle, \quad (3)$$

где  $F$  и  $\dot{F}$  — квантовые числа полного механического момента атома (ядра и электронов),  $M$  и  $\dot{M}$  — их проекции,  $\dot{J}$  и  $J$  — квантовые числа суммарного орбитального и спинового момента электронов,  $I$  —

спин ядра,  $q$  — параметр поляризации лазерного излучения ( $q = 0$  для линейной поляризации и  $q = \pm 1$  для круговой поляризации). Элементы  $\begin{pmatrix} F & 1 & \dot{F} \\ -M & q & \dot{M} \end{pmatrix}$  и  $\begin{Bmatrix} J & 1 & \dot{J} \\ \dot{F} & I & F \end{Bmatrix}$  представляют собой  $3j$ - и  $6j$ -символы Вигнера соответственно [9,10]. В свою очередь, приведенный дипольный момент  $\langle J \parallel D \parallel \dot{J} \rangle$  выражается [7,11] через характеристики перехода:

$$|\langle J \parallel D \parallel \dot{J} \rangle|^2 = \frac{3\hbar\lambda^3(2J+1)}{4 \cdot 8\pi^3} A(J \rightarrow J), \quad (4)$$

где  $A(J \rightarrow J)$  — коэффициент Эйнштейна соответствующего перехода.

Таким образом, для канала 5–6–5–4 частоты Раби выражаются следующим образом:

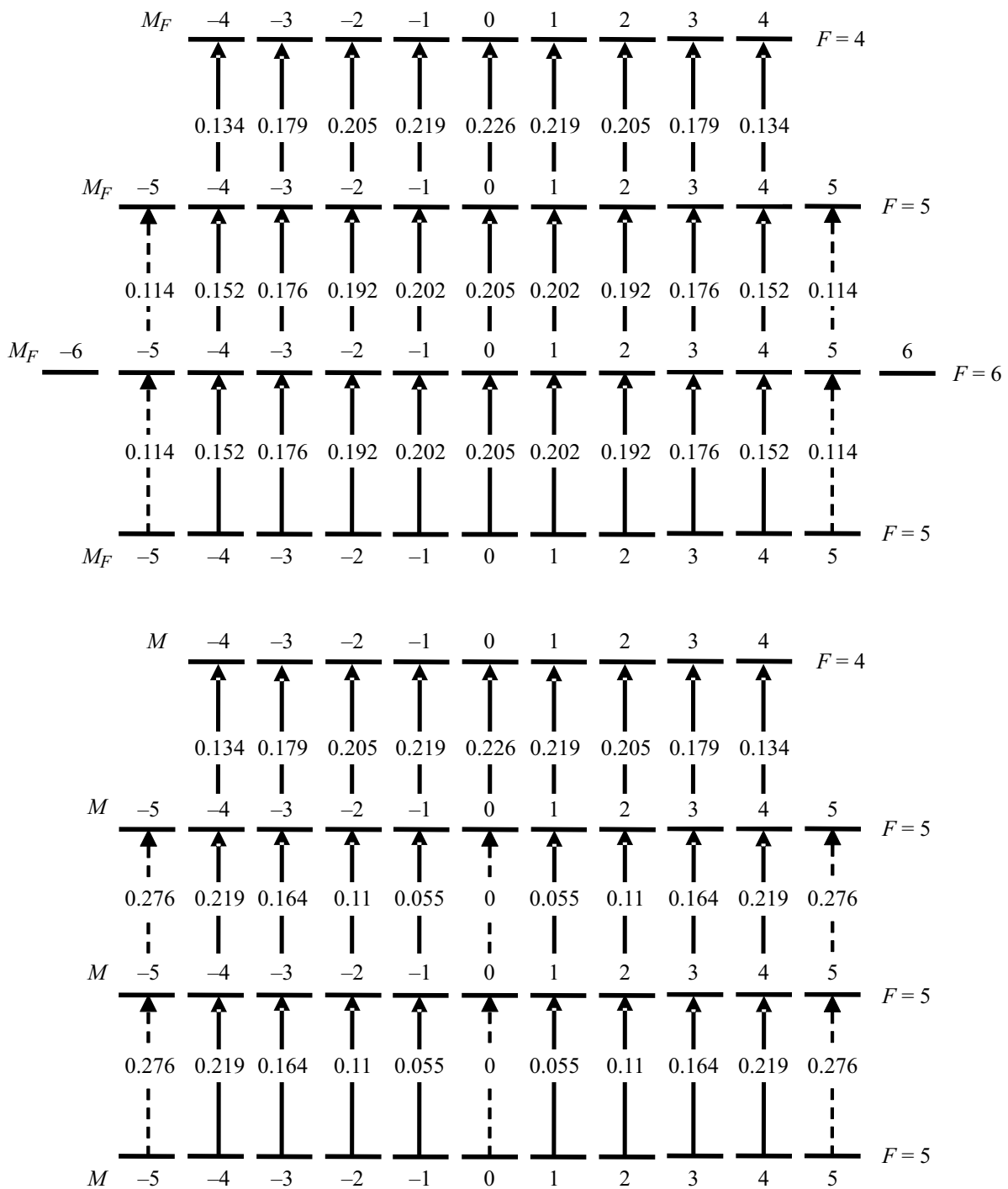
$$\Omega_1 = \begin{pmatrix} F & 1 & \dot{F} \\ -M & q & \dot{M} \end{pmatrix} \sqrt{143} \sqrt{\frac{1}{66}} \sqrt{\frac{3\lambda^3 I A_1(5/2 \rightarrow 3/2)}{\hbar\pi^2 c}}, \quad (5)$$

$$\Omega_2 = \begin{pmatrix} F & 1 & \dot{F} \\ -M & q & \dot{M} \end{pmatrix} \sqrt{143} \sqrt{\frac{1}{66}} \sqrt{\frac{3\lambda^3 I A_2(3/2 \rightarrow 5/2)}{\hbar\pi^2 c}}. \quad (6)$$

Аналогично для канала 5–5–5–4

$$\Omega_1 = \begin{pmatrix} F & 1 & \dot{F} \\ -M & q & \dot{M} \end{pmatrix} \frac{11}{5} \sqrt{\frac{7}{66}} \sqrt{\frac{3\lambda^3 I A_1(5/2 \rightarrow 3/2)}{\hbar\pi^2 c}}, \quad (7)$$

$$\Omega_2 = \begin{pmatrix} F & 1 & \dot{F} \\ -M & q & \dot{M} \end{pmatrix} \frac{11}{5} \sqrt{\frac{7}{66}} \sqrt{\frac{3\lambda^3 I A_2(3/2 \rightarrow 5/2)}{\hbar\pi^2 c}}. \quad (8)$$



**Рис. 2.** Схемы проекций переходов и абсолютные значения  $3j$ -символов для каналов 5–6–5–4 (вверху) и 5–5–5–4 (внизу). Линейная поляризация.

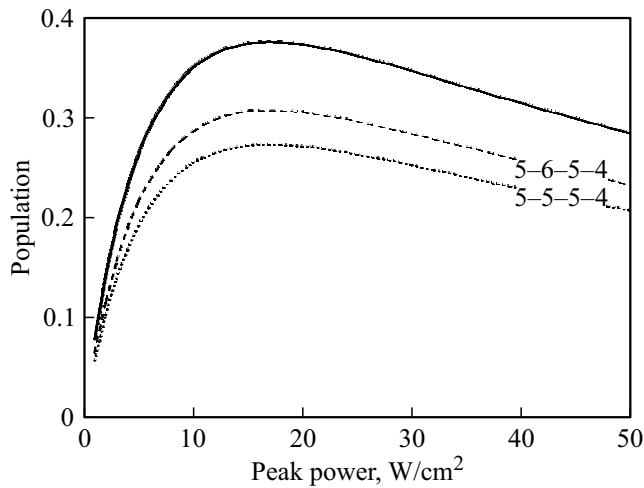
Для линейной поляризации лазерного излучения ( $\Delta M = 0$ ) абсолютные значения  $3j$ -символов представлены на схеме (рис. 2) для каналов 5–6–5–4 и 5–5–5–4.

Из формулы (1) следует, что максимальное значение  $W_2 = 3/8$  достигается при равных частотах Раби:

$$\Omega_1 = \Omega_2. \tag{9}$$

Зависимости  $W_2$  от интенсивности лазерного излучения на второй ступени для каналов 5–6–5–4 и 5–5–5–4 представлены на рис. 3.

В отличие от некогерентной фотоионизации когерентная заселенность с увеличением интенсивности сначала растет, достигая максимума при равенстве частот Раби. При дальнейшем увеличении интенсивности когерентная заселенность уменьшается и стремится к нулю,



**Рис. 3.** Линейная поляризация. Зависимость населенности второго возбужденного состояния от интенсивности лазерного излучения второй ступени (сплошная кривая). Усредненная населенность второго возбужденного состояния в каналах 5–6–5–4 (штриховая кривая) и 5–5–5–4 (пунктир). Интенсивность первой ступени  $150 \text{ W/cm}^2$ .

в то время как некогерентная остается постоянной. Вследствие того, что отношения  $3j$ -символов на первом и втором переходах одинаковы, зависимости от интенсивности, построенные по формуле (1) для различных проекций, совпадают. Для оценки эффективности фотоионизации на рисунке представлены также усредненные по 11 проекциям заселенности второго возбужденного состояния:

$$\bar{W}_2 = \left[ W_2(M=0) + 2W_2(M=1) + 2W_2(M=2) + 2W_2(M=3) + 2W_2(M=4) \right] / 11. \quad (10)$$

Максимум усредненной заселенности для канала 5–5–5–4 оказывается меньше, чем для канала 5–6–5–4, из-за того, что переход между проекциями  $M=0 \rightarrow 0 \rightarrow 0 \rightarrow 0$  для канала 5–5–5–4 запрещен.

Схемы проекций переходов и абсолютные значения  $3j$ -символов для круговой поляризации ( $q = -1$ ) представлены на схеме (рис. 4). На рис. 5 представлена зависимость заселенностей  $W_2$  для круговой поляризации для различных проекций начального состояния на канале 5–6–5–4. Из рисунка видно, что при круговой поляризации отношения  $3j$ -символов на первом и втором переходах существенно отличаются для различных стартовых проекции. Соответственно с этим отличаются и положения максимумов населенностей для различных сочетаний проекции, связанных круговой поляризацией. В связи с этим невозможно подобрать интенсивности лазерного излучения первой и второй ступеней так, чтобы в одинаковой степени эффективно осуществлять фотоионизацию со всех стартовых проекции. Например, для комбинации проекций  $5 \rightarrow 4 \rightarrow 3 \rightarrow 2$  интенсивность второй ступени  $10 \text{ W/cm}^2$  оказывается

слишком большой, и она почти не работает (населенность ниже 0.05), так же как и для комбинации  $4 \rightarrow 3 \rightarrow 2 \rightarrow 1$  (населенность меньше 0.15). Комбинации проекций  $3 \rightarrow 2 \rightarrow 1 \rightarrow 0$ ,  $2 \rightarrow 1 \rightarrow 0 \rightarrow -1$ ,  $1 \rightarrow 0 \rightarrow -1 \rightarrow -2$  и  $0 \rightarrow -1 \rightarrow -2 \rightarrow -3$  оказываются близко к максимуму, а для комбинации  $-1 \rightarrow -2 \rightarrow -3 \rightarrow -4$  интенсивность оказывается недостаточной (населенность ниже 0.15). В результате усредненная заселенность не поднимается выше 0.15.

Существенно лучше складывается ситуация с круговой поляризацией на канале 5–5–5–4 (рис. 4). Максимумы различных комбинаций проекции оказываются существенно ближе друг к другу, что и обуславливает более высокую ( $\sim 0.235$ ) усредненную населенность второго возбужденного состояния (рис. 6).

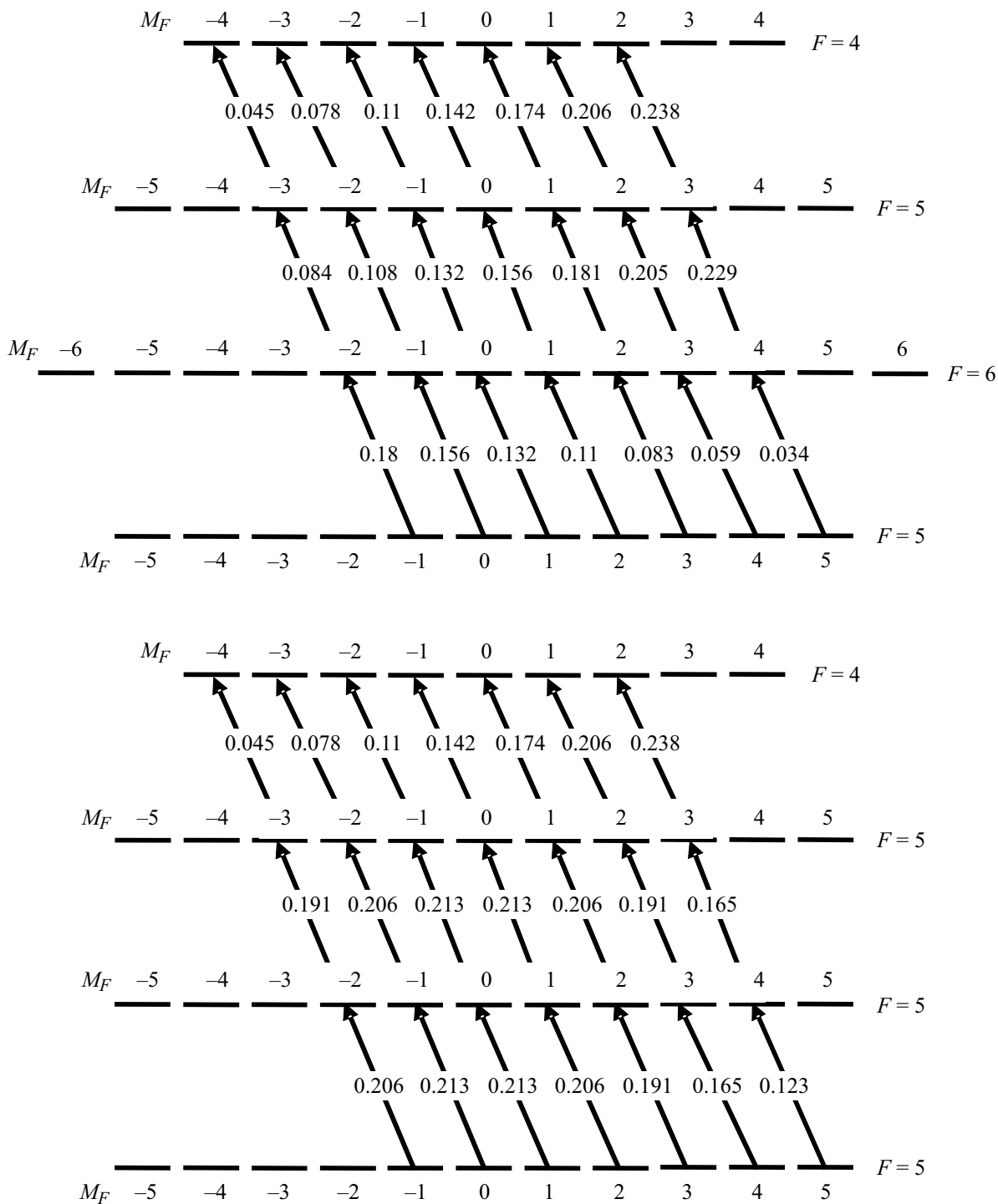
На рис. 7 для сравнения представлены усредненные населенности для линейной и круговой поляризации на каналах 5–6–5–4 и 5–5–5–4. Наиболее эффективно идет фотоионизация с линейной поляризацией на канале 5–6–5–4, немного уступает ей линейная поляризация на канале 5–5–5–4 из-за запрещенной комбинации проекций  $0 \rightarrow 0 \rightarrow 0 \rightarrow 0$ . Круговая поляризация заметно проигрывает линейной из-за неоднородности отношений сил переходов первой и второй ступени.

## Эксперимент

Влияние поляризации на эффективность фотоионизации  $^{175}\text{Lu}$  исследовалось на схеме  $5d6s^2 2D_{3/2} - 5d6s6p^4 F_{3/2}^o - 5d6s7s^4 D_{3/2} - (53375 \text{ cm}^{-1})_{1/2}^o$  методом лазерной резонансной ионизационной масс-спектрологии (LRIMS). Для резонансного возбуждения и ионизации атомов использовалось излучение трех импульсных лазеров на красителях (ЛК) (540, 535 и 618 nm), накачиваемых лазером на парах меди с частотой следования импульсов 10 kHz. Каждый ЛК состоял из задающего генератора, работающего на одной продольной моде в режиме активной стабилизации длины волны, и усилителя ЛК. Выходные средние мощности ЛК составляли 1–4 W, спектральная ширина линии генерации 100–150 MHz (FWHM), длительность импульсов 15 ns (FWHM).

Лучи трех ЛК телескопировались до размера  $\varnothing = 10 \text{ mm}$  и коллимировались. Их пространственное сведение проводилось на полупрозрачном и дихроичном зеркалах. Система поворотных зеркал направляла единый трехцветный луч к камере масс-спектрометра (МС). Из-за особенностей конструкции лазерной системы излучение трех ЛК было линейно поляризованным в единой плоскости.

Для регистрации фотоионов использовался коммерческий квадрупольный масс-спектрометр МС-7302. Атомный пучок с углом расходимости  $\sim 3^\circ$  формировался путем испарения металлического лютеция в высоком вакууме при температуре  $\sim 2000^\circ\text{C}$ , доплеровское уширение атомов в пучке  $\sim 150 \text{ MHz}$ . Средняя тепловая скорость атомов в пучке составляла около 550 m/s.

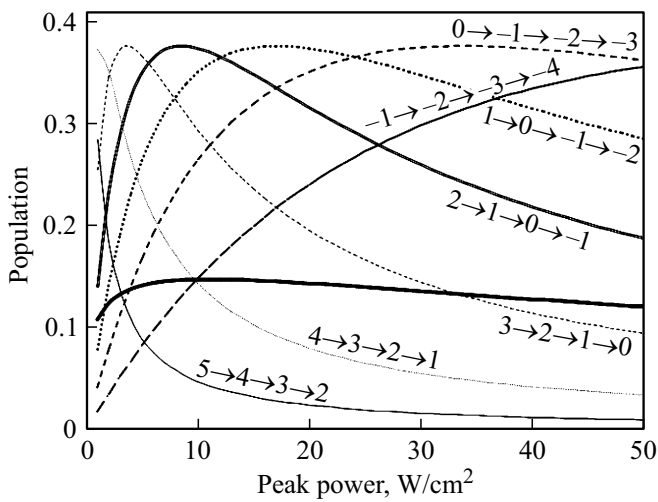


**Рис. 4.** Схема проекция переходов для круговой поляризации ( $q = -1$ ) и абсолютные значения  $3j$ -символов для каналов 5–6–5–4 (вверху) и 5–5–5–4 (внизу).

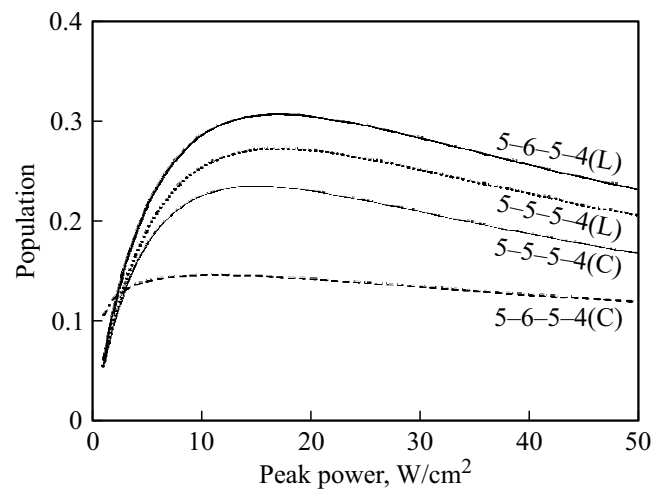
Поэтому в течение длительности лазерного импульса 15 ns область взаимодействия лазерного излучения с ансамблем атомов диаметром 2 mm можно считать изолированной системой, пренебрегая времяпролетным уширением. Плотность атомов в области взаимодействия составляла около  $10^{10} \text{ cm}^{-3}$  и давление остаточного газа  $(1-2) \cdot 10^{-6}$  Торр, что практически исключает

столкновения атомов пучка как между собой, так и с молекулами остаточного газа. Технические параметры и особенности экспериментальной установки детально описаны в работах [12,13].

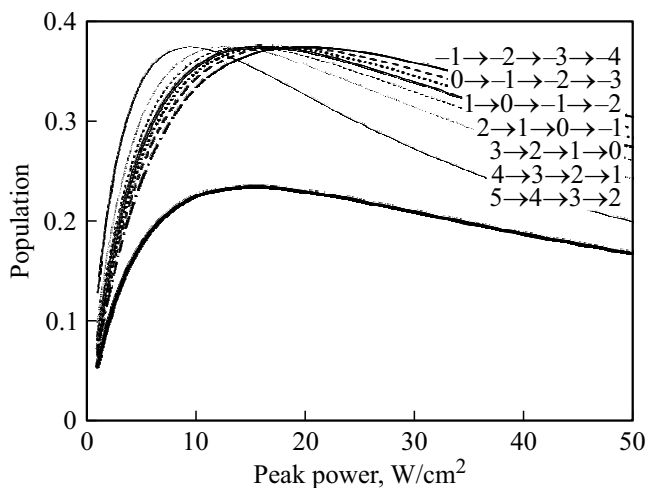
Для смены поляризации лазерного излучения (линейная  $\leftrightarrow$  круговая) использовалась четвертьволновая пластинка, изготовленная из кварцевого стекла



**Рис. 5.** Круговая поляризация ( $q = -1$ ), канал фотоионизации 5-6-5-4. Зависимость населенности второго возбужденного состояния от интенсивности лазерного излучения второй ступени для разных проекций. Широкая жирная линия — усредненная населенность. Интенсивность первой ступени  $150 \text{ W/cm}^2$ .



**Рис. 7.** Зависимость усредненной населенности второго возбужденного состояния от интенсивности лазерного излучения на второй ступени для каналов 5-6-5-4 и 5-5-5-4 в случае линейной (L) и круговой (C) поляризааций. Интенсивность первой ступени  $150 \text{ W/cm}^2$ .



**Рис. 6.** Круговая поляризация ( $q = -1$ ), канал фотоионизации 5-5-5-4. Зависимость населенности второго возбужденного состояния от интенсивности лазерного излучения второй ступени для разных проекций. Широкая жирная линия — усредненная населенность. Интенсивность первой ступени  $150 \text{ W/cm}^2$ .

толщиной  $10 \text{ mm}$ . Оптическая анизотропия создавалась путем одноосного сжатия поперек оси лазерного луча. Давление выставлялось до достижения на выходе пластины сдвига фазы  $\pi/2$  на длине волны  $540 \text{ nm}$  (первая ступень). Из-за близости длин волн переход на круговую поляризацию выполнялся одновременно и для луча второй ступени  $535 \text{ nm}$ . Эллиптичность поляризации излучения  $618 \text{ nm}$  (третья ступень) составила  $0.8$ .

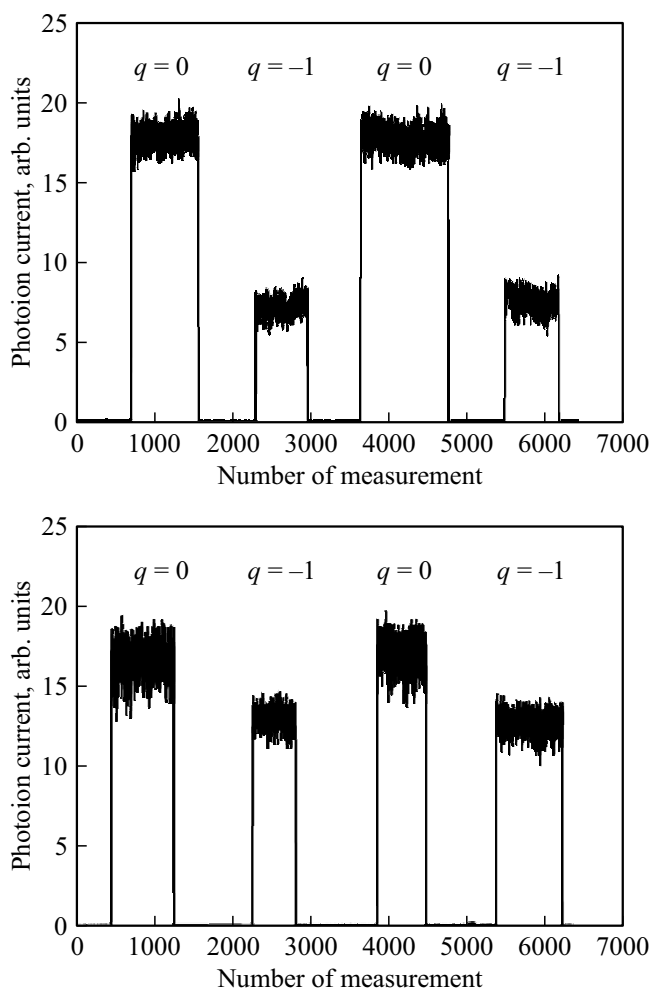
**Таблица**

Канал фотоионизации	Поляризация	Фотоионный сигнал (эксперимент), отн. ед.	Населенность (расчет)
5-6-5-4	линейная	$31 \pm 3$	0.31
	круговая	$13 \pm 1$	0.14
5-5-5-4	линейная	$29 \pm 3$	0.27
	круговая	$23 \pm 2$	0.23

### Результаты и обсуждение

На рис. 8 представлена запись сигнала фотоионов  $^{175}\text{Lu}$  при смене поляризации лазерного излучения с линейной на круговую для каналов 5-6-5-4 и 5-5-5-4. Области, когда фотоионный сигнал снижается до нуля, соответствуют периодам перекрытия лазерных лучей в процессе изменения их поляризааций путем  $45^\circ$ -поворота четвертьволновой пластинки. Результаты сведены в таблице.

Из таблицы видно, что отношения экспериментально измеренных значений фотоионного тока находятся в хорошем соответствии с усредненной населенностью второго возбужденного состояния, рассчитанной по формулам (1)–(9). Следует отметить, что некогерентный подход, основывающийся на определении скорости каждого перехода в отдельности, не позволяет получить результаты, согласующиеся с экспериментом. Именно применение когерентного подхода, учитывающего интерференцию колебаний населенности уровней первого и второго переходов для каждого сочетания проекций с последующим суммированием результатов, позволило достичь согласия с экспериментальными данными.



**Рис. 8.** Запись фотоионного сигнала  $^{175}\text{Lu}$  в каналах фотоионизации 5-6-5-4 (вверху) и 5-5-5-4 (внизу) при одновременной смене поляризации ЛК на всех ступенях  $q = 0 \rightarrow -1 \rightarrow 0 \rightarrow -1$ . Провалы сигнала до нуля соответствуют периодам перекрытия лазерных лучей для осуществления смены поляризации лучей путем  $45^\circ$ -разворота четвертьволновой пластинки. Интенсивность ЛК первой и второй ступени 150 и 20  $\text{W}/\text{cm}^2$  соответственно.

## Заключение

При использовании импульсного узкополосного одно-модового лазерного излучения возможно возникновение когерентной картины фотозвуждения, которая в ряде случаев ограничивает эффективность многоступенчатой фотоионизации. К таким случаям следует отнести ситуацию, когда отношения сил переходов на соседних ступенях фотоионизации сильно отличаются для различных проекций начального состояния и никакой комбинацией интенсивностей не удастся удовлетворить условие равенства частот Раби для всех комбинаций проекции состояний. Результаты исследования говорят в пользу того, что в течение лазерного импульса различные комбинации проекций ведут себя как изолированные системы, и чем точнее соблюдено условие равенства

частот Раби для соседних ступеней для каждой проекции, тем эффективнее протекает фотоионизация по всему каналу.

## Финансирование работы

Исследование выполнено за счет гранта Российского научного фонда (проект № 17-13-01180).

## Конфликт интересов

Авторы заявляют, что у них нет конфликта интересов.

## Список литературы

- [1] A.B. Dyachkov, A.A. Gorkunov, A.V. Labozin, K.A. Makoveeva, S.M. Mironov, V.Y. Panchenko, V.A. Firsov, G.O. Tsvetkov. *Opt. Spectrosc.*, **128**, 6–11 (2020). DOI:10.1134/S0030400X20010087
- [2] А.Б. Дьячков, А.А. Горкунов, А.В. Лабозин, С.М. Миронов, В.А. Фирсов, Г.О. Цветков, В.Я. Панченко. *Квант. электрон.*, **4**, 367–370 (2022). [http://www.mathnet.ru/php/archive.phtml?wshow=paper&jrnid=qe&paperid=18029&option\\_lang=rus](http://www.mathnet.ru/php/archive.phtml?wshow=paper&jrnid=qe&paperid=18029&option_lang=rus).
- [3] M.V. Suryanarayana. *JOSA B*, **38**, 353–370 (2021).
- [4] B.W. Shore, J. Ackerhalt. *Phys. Rev. A*, **15**, 1640–1647 (1977). DOI: 10.1103/PhysRevA.15.1640
- [5] Z. Białynicka-Birula, I. Białynicki-Birula, J.H. Eberly, B.W. Shore. *Phys. Rev. A*, **16**, 2048–2054 (1977). DOI: 10.1103/PhysRevA.16.2048
- [6] B.W. Shore. *Phys. Rev. A*, **23**, 1608–1610 (1981). DOI: 10.1103/PhysRevA.23.1608
- [7] B. Shore. *Acta Phys. Slovaca. Rev. Tutorials*, **58**, 243–486 (2008).
- [8] J.H. Eberly, B.W. Shore, Z. Białynicka-Birula, I. Białynicki-Birula. *Phys. Rev. A*, **16**, 2038 (1977).
- [9] I.I. Sobel'man. *Introduction to the Theory of Atomic Spectra* (International Series of Monographs in Natural Philosophy, Elsevier, 2016).
- [10] O. Axner, J.O. Gustafsson, N. Omenetto, J.D. Winefordner. *Spectrochim. Acta B*, **59**, 1–39 (2004). DOI: 10.1016/j.sab.2003.10.002
- [11] В.Б. Берестецкий. *Релятивистская квантовая теория* (Наука, 1968).
- [12] A.B. D'yachkov, A.A. Gorkunov, A.V. Labozin, S.M. Mironov, V.Y. Panchenko, V.A. Firsov, G.O. Tsvetkov. *Quant. Electron.*, **48**, 75–81 (2018). DOI: 10.1070/qel16493
- [13] A.B. D'yachkov, A.A. Gorkunov, A.V. Labozin, S.M. Mironov, V.Y. Panchenko, V.A. Firsov, G.O. Tsvetkov. *Instruments Exp. Tech.*, **61**, 548–555 (2018). DOI: 10.1134/S0020441218040048