01

Экспериментальное исследование влияния эффекта Допплера на изотопически селективную фотоионизацию лютеция

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

Национальный исследовательский центр „Курчатовский институт“,
Москва, Россия

e-mail: Tsvetkov_GO@nrcki.ru

Поступила в редакцию 25.06.2025 г.
В окончательной редакции 20.11.2025 г.
Принята к публикации 01.12.2025 г.

Экспериментально исследовано влияние эффекта Доплера на изотопически селективную лазерную фотоионизацию лютеция с использованием трехступенчатой схемы $5d6s^2\,{}^2D_{3/2}-5d6s6p\,{}^4F^o_{5/2}-5d6s7s\,{}^4D_{3/2}-(53375\,\mathrm{cm}^{-1})^o_{1/2}$.

Ключевые слова: лазерное разделение изотопов, лазерная селективная фотоионизация, лютеций-177.

DOI: 10.21883/0000000000

Введение

Применение метода лазерного фотоионизационого разделения изотопов в атомном паре (AVLIS метод) для разделения изотопов лютеция является перспективным как с точки зрения выделения изотопа ^{176}Lu (природное содержание 2.49 %) из природной смеси, так и выделения радионуклидов ^{177}Lu и ^{177m}Lu из лютеция, подвергнутого облучению нейтронами в реакторе. Эти технологические процессы могут быть использованы для получения радионуклида ^{177}Lu для его медицинского применения [1,2].

Суть лазерного фотоионизационного метода состоит в том, что поток атомов исходного вещества направляется в рабочий объем, заполненный лазерным излучением, в котором происходит селективная фотоионизация атомов целевого изотопа. Образованные фотоионы целевого изотопа вытягиваются электрическим полем на коллектор продукта, в то время как атомы других изотопов, оставаясь нейтральными, продолжают свой путь по прямой на коллектор отвала.

При проектировании рабочего объема в лазерном фотоионизационном методе одним из ключевых параметров является угол расходимости атомного потока. Этот параметр определяет свойства ансамбля атомов, взаимодействующих с лазерным излучением, поскольку атомы, летящие под различными углами к лазерному лучу вследствие эффекта Доплера, воспринимают лазерное излучение смещенным в сторону большей или меньшей частоты. Для обоснованного выбора угла расходимости нужно знать каким образом отстройка лазерного излучения, соответствующая отклонению атома, влияет на селективность и эффективность фотоионизации. Данная работа посвящена экспериментальному исследованию влияния эффекта Доплера на селективность и эффективность фотоионизации лютеция применительно к задаче выделения изотопа ^{176}Lu из природной смеси.

Так как изотопы природной смеси ^{175}Lu и ^{176}Lu имеют ненулевой спин ядра, все уровни энергии расщеплены в мультиплеты (рис. 1, 2). Подуровни в мультиплете определяются полным атомным моментом $F = J + I, J + I - 1, \ldots, |J - I|$, где J — полный электронный момент атома, I — спин ядра. Спектр сверхтонкой структуры (СТС) составляют переходы между подуровнями мультиплетов с изменением момента $\Delta F = 0, \pm 1$, в результате чего оптический спектр фотоионизации для каждого изотопа состоит из 30 линий. Разность частот линий, как правило, значительно превосходит спектральную ширину лазерного излучения. Таким образом, при определенной настройке лазеров фотоионизация осуществляется только по одной цепочке линий первой, второй и третьей ступеней — каналу фотоионизации. Число возможных каналов с учетом правил отбора достигает 44.

Селективная фотоионизация с использованием трехступенчатой схемы $5d6s^2\,{}^2D_{3/2}-5d6s6p\,{}^4F^o_{5/2}-5d6s7s\,{}^4D_{3/2}-(53375\,\mathrm{cm}^{-1})^o_{1/2}$ исследовалась в теоретических работах [3,4], наиболее близкими к экспериментальным являются результаты работы [4], однако эти результаты получены с использованием лазеров со смешанной поляризацией, в то время как в наших экспериментах мы всегда использовали лазерное излучение с линейной поляризацией, причем направление поляризаций лазерного излучения всех трех ступеней совпадает. Правильность этого выбора подтверждается результатами экспериментальной работы [5], где исследовалась фотоионизация по наиболее эффективным каналам с использованием различной поляризации лазерного излучения. Результаты экспериментов хорошо описываются теорией, если предположить, что взаимодействие

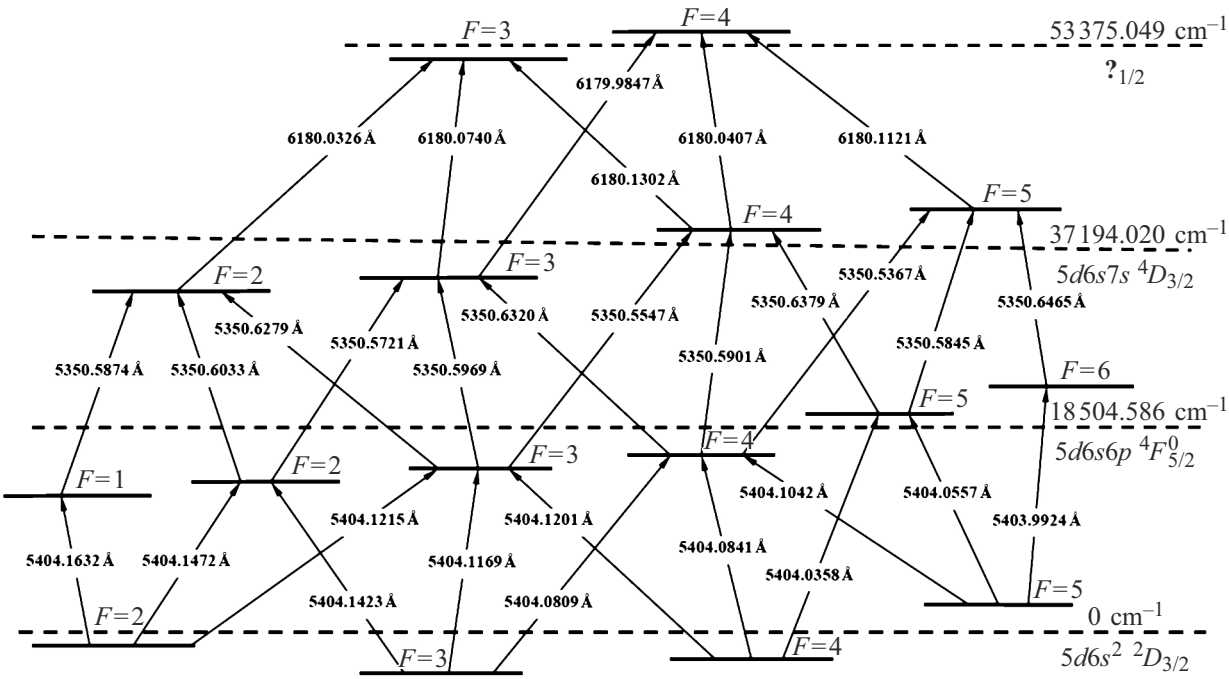

Рис. 1. Схема фотоионизации изотопа ^{175}Lu ($I = 7/2$). Длины волн для вакуума.

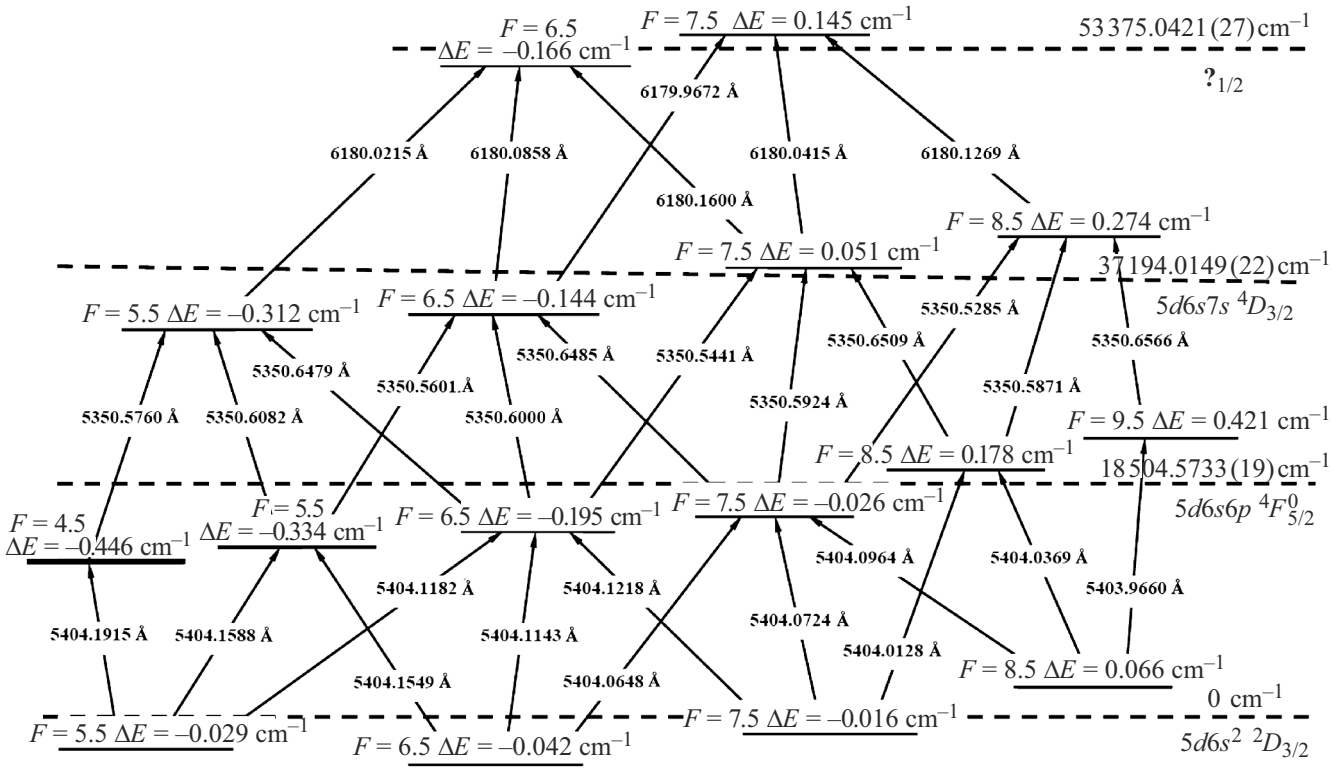

Рис. 2. Схема фотоионизации изотопа ^{176}Lu ($I = 7$). Длины волн для вакуума.

атомов с лазерным излучением является когерентным, характеризующимся частотой Раби, а сочетания отдельных проекций M полного механического момента атома F переходов ведут себя как замкнутые системы. Тогда в случае линейной поляризации правило отбора $\Delta M = 0$ приводит к тому, что соотношение дипольных моментов первого и второго переходов остается одинаковым для всех проекций и можно выбрать

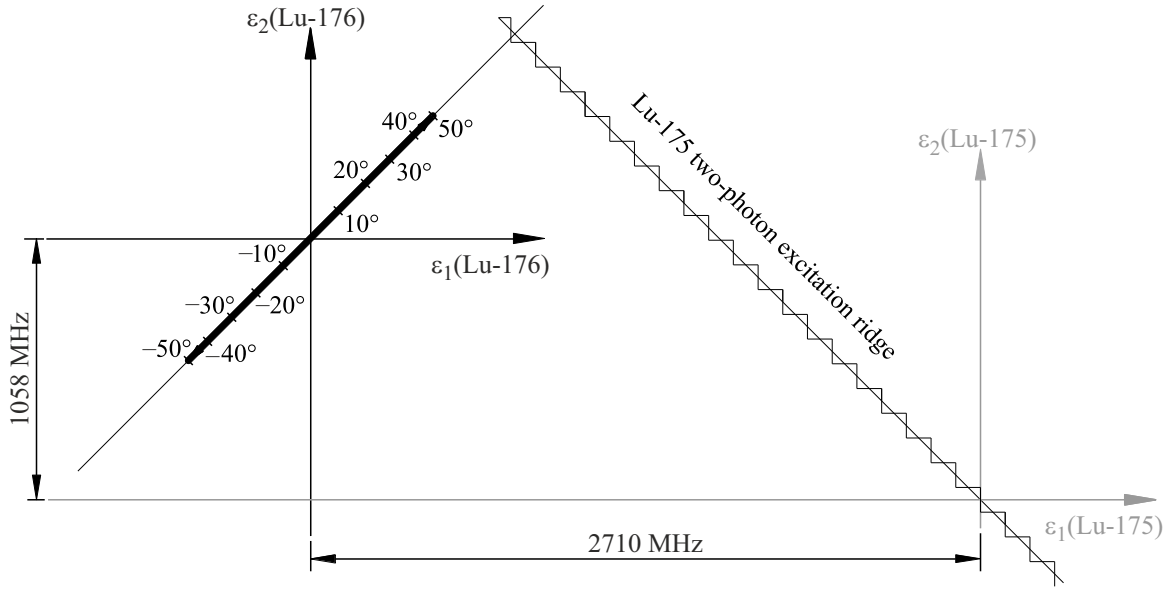

Рис. 3. Линия изменения (толстая линия) отстроек частоты лазерного излучения от резонанса первого и второго переходов при различных углах пролета атомов целевого, ^{176}Lu, и нецелевого, ^{175}Lu, изотопов в рабочем объеме.

соотношение интенсивностей лазерного излучения, которое обеспечивает равенство частот Раби на первом и втором переходах для всех сочетаний проекций, подчиняющихся правилу отбора $\Delta M = 0$. В случае круговой поляризации правило отбора $\Delta M = \pm 1$ и соотношение дипольного момента первого и второго переходов оказывается разным для различного сочетания проекций. Это приводит к тому, что выбором интенсивностей лазерного излучения можно обеспечить равенство частот Раби первого и второго переходов только для небольшого количества сочетаний проекций, в то время как у других сочетаний частоты Раби на первом и втором переходе будут сильно отличаться и фотоионизация будет неэффективна.

Наиболее эффективным и селективным каналом фотоионизации изотопа ^{176}Lu является канал 8.5–9.5–8.5–7.5 [4], поскольку он задействует в качестве начальной наиболее заселенную компоненту основного состояния с $F = 8.5$ (заселенность 0.3), а также поскольку линии переходов лежат на наибольшем удалении на шкале частот от соответствующих линий нецелевого изотопа ^{175}Lu. При селективной фотоионизации изотопа лютеция ^{176}Lu по каналу 8.5–9.5–8.5–7.5 наиболее близким и вероятным каналом фотоиоизации нецелевого изотопа ^{175}Lu является канал 5–6–5–4. Разность между частотами соответствующих резонансов составляет на первом переходе −2710 MHz, а на втором переходе +1058 MHz. На рис. 3 представлена схема изменения частотных отстроек ε_1 и ε_2 от резонансов первого и второго переходов соответственно для изотопов ^{175}Lu и ^{176}Lu. Из рисунка видно, что точка резонанса целевого изотопа ^{176}Lu располагается в секторе, образуемом осью резонанса по второму переходу (ось $\varepsilon_2 = 0$ для ^{175}Lu) и гребнем двухфотонного перехода ($\varepsilon_1 = -\varepsilon_2$) нецелевого изотопа ^{175}Lu (рис. 3). За положительные углы пролета атомов выбраны углы, при которых отстройки соответствуют приближению к двухфотонному гребню нецелевого изотопа ^{175}Lu, соответственно при отрицательных углах происходит приближение к оси резонанса по второму переходу нецелевого изотопа ^{175}Lu. Таким образом, при отклонении атомов от вертикали в любую сторону (как навстречу лазерному лучу, так и по лазерному лучу) возникают условия для увеличения фотоионизации нецелевого изотопа ^{175}Lu.

При экспериментальном исследовании влияния эффекта Доплера с использованием узкого атомного пучка, пересекающегося с лазерными лучами под углом 90°, длины волн лазерного излучения всех трех ступеней трехступенчатой схемы фотоионизации лютеция отстраиваются таким образом, чтобы частоты лазерного излучения, воспринимаемые атомом, соответствовали тем, которые воспринимает атом, летящий под углом γ к направлению лазерного излучения. Атом, летящий вдоль (или навстречу) лазерного луча со скоростью v, воспринимает частоту лазерного поля ν

$$\nu = \frac{c - v}{\lambda} = \frac{c(1 - v/c)}{\lambda} = \nu_0\left(1 - \frac{v}{c}\right), \qquad (1)$$

где ν_0 — истинная частота лазерного излучения, c — скорость света.

Атом, имеющий скорость V под некоторым углом γ к оси, перпендикулярной направлению луча, имеет проекцию скорости на направление луча

$$v = V \sin\gamma. \qquad (2)$$

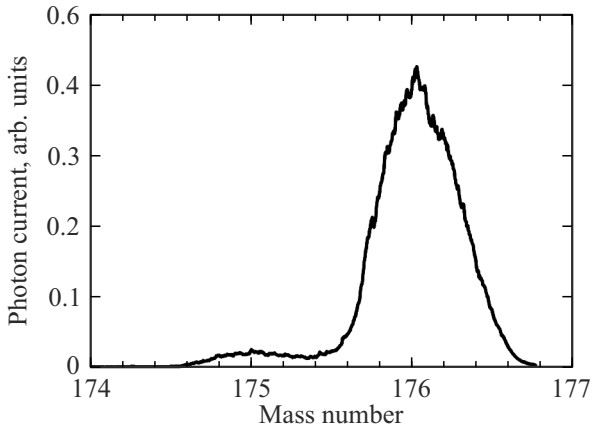

Рис. 4. Масс-спектр фотоионного тока при значениях длин волн, соответствующих углу $+15^\circ$ и средней плотности мощности на первой, второй и третьей ступени 68 mW/cm^2, 26 mW/cm^2 и 2.25 W/cm^2 соответственно.

Таким образом, частота лазерного поля для этого атома будет

$$\nu = \nu_0\Big(1 - \frac{V\sin\gamma}{c}\Big), \tag{3}$$

и соответственно длина волны

$$\lambda = \frac{c}{\nu} = \frac{c}{\nu_0(1 - \frac{V\sin\gamma}{c})} = \frac{\lambda_0}{(1 - \frac{V\sin\gamma}{c})}. \tag{4}$$

Таким образом, атом, летящий перпендикулярно лазерному пучку, взаимодействует с лазерным излучением с длиной волны λ как взаимодействовал бы атом, летящий под углом γ к оси, перпендикулярной направлению луча, с лазерным излучением с длиной волны λ_0. Исходя из формулы (4) построена табл. 1 длин волн для исследования фотоионизации изотопа ^{176}Lu для средней скорости атомов лютеция 492 m/s, которая реализуется при температуре испарения 1700 K.

Следует отметить, что при испарении лютеция используемый температурный диапазон составляет 1700–2300 K. При использовании температуры, большей 1700 K, скорость движения атома возрастает, однако наборы длин волн из табл. 1 по-прежнему будут отражать воспринимаемые атомом наборы частот, но при меньших углах. Например, угол отклонения в 30° при температуре 1700 K (средняя скорость атома $\sim$ 490 m/s) соответствует углу 27.4° при температуре 2000 K (средняя скорость атома $\sim$ 530 m/s) и углу 25.5° при температуре 2300 K (средняя скорость атома $\sim$ 570 m/s).

Эксперимент

Эксперимент осуществлялся в вакуумной камере, оснащенной испарителем металлического лютеция и квадрупольным масс-спектрометром МС-7302. Атомный пучок с полным углом расходимости 0.2° (доплеровское уширение 10 MHz) пересекался с лазерным пучком под прямым углом в ионизационной камере источника ионов масс-спектрометра. Область взаимодействия представляет собой цилиндр диаметром 2 mm и длиной 2 mm. Фотоионы вытягиваются ионной оптической системой масс-спектрометра и регистрируются с помощью вторичного электронного умножителя. Это позволяет определять значение и изотопный состав фотоионного тока. Для резонансного возбуждения и ионизации атомов использовалось излучение трех импульсных одномодовых лазеров на красителях (ЛК) с накачкой излучением лазеров на парах меди. Спектральная ширина линии генерации ЛК составляла 100–150 MHz (FWHM), длительность импульсов (FWHM) — 20 ns, частота следования импульсов — 10 kHz, излучение всех трех лазеров имело линейную поляризацию в одном направлении. Лазерные импульсы первой, второй и третьей ступеней были совмещены во времени. Технические параметры и особенности экспериментальной установки детально описаны в работах [6,7]. В ходе эксперимента длины волн лазеров настраивались в соответствии со значениями табл. 1 на определенный угол и производилась запись масс-спектра фотоионного тока.

Таблица 1. Зависимость длин волн первой, второй и третьей ступеней фотоионизации изотопа ^{176}Lu по каналу 8.5–9.5–8.5–7.5 от угла γ при средней скорости 492 m/s (температура испарения 1700 K)

Угол γ	Длина волны, Å		
	первая ступень	вторая ступень	третья ступень
−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

Исследование проведено для двух наборов интенсивности лазерного излучения. Первый набор соответствует средним плотностям мощности 35 mW/cm^2, 22 mW/cm^2 и 2.25 W/cm^2 (средние интенсивности, принимая во внимание соотношение длительности и частоты следования импульсов, 175 W/cm^2, 110 W/cm^2 и 11.25 kW/cm^2) на первой, второй и третьей ступенях фотоионизации, что приблизительно равно параметрам лазерного излучения, использованным в работе [8], в которой в результате прямого измерения получена степень фотоионизационного извлечения изотопа ^{175}Lu из атомного потока 0.17. Принимая во внимание, что заселенность основного

состояния лютеция при температуре испарения составляет 0.7, а заселенность СТС-подуровня 0.34, максимально возможная степень извлечения составляет 0.24, и экспериментально полученная в работе [8] с использованием узкого атомного пучка степень извлечения 0.17 соответствует вероятности фотоионизации атомов при прохождении облучаемого объема 0.7. Таким образом, использованное в данной работе сочетание интенсивностей лазерного излучения соответствует приближению к насыщению и может быть применено при промышленном фотоионизационном выделении лютеция из узкого атомного пучка с доплеровской шириной 200–300 MHz. Авторов также интересовала возможность расширения спектрального контура взаимодействия за счет полевого уширения для работы с более широкими атомными потоками и поэтому второй набор отличался от первого в сторону увеличения интенсивности, средние плотности мощности на первой, второй и третьей ступенях составляли 68 mW/cm^2, 26 mW/cm^2 и 2.25 W/cm^2 соответственно (средние интенсивности 340 W/cm^2, 130 W/cm^2 и 11.25 kW/cm^2).

В табл. 2 представлены значения полученного фотоионного тока целевого изотопа ^{176}Lu и его концентрации. На рис. 4 представлен масс-спектр фотоионного тока при значениях длин волн, соответствующих углу $+15^\circ$ и средней плотности мощности на первой, второй и третьей ступенях 68 mW/cm^2, 26 mW/cm^2 и 2.25 W/cm^2 соответственно.

Обсуждение

Представляется интересным сравнение полученных результатов с аналитическими оценками. Опыт использования узкополосных одномодовых лазеров показывает, что многоступенчатая фотоионизация носит когерентный характер, что, возможно, связано с тем, что для накачки лазеров на красителях различных ступеней фотоионизации используется комплекс лазеров на парах меди с одним задающим генератором. О когерентном характере говорит снижение фотоионного сигнала при увеличении интенсивности лазерного излучения одной из ступеней выше определенного предела, наблюдение и изучение эффекта Аутлера-Таунса [9,10], а также изучение влияния поляризации лазерного излучения на выход фотоионов [5]. Для описания когерентного взаимодействия наиболее простым теоретическим подходом является картина взаимодействия монохроматического лазерного излучения с атомной системой в рамках теории возмущений, зависящей от времени. При описании трехуровневой системы (рис. 5) в приближении RWA (rotation wave approximation) рассматривается система трех уравнений [11]:

$$\frac{da_0}{dt} = i\,\frac{1}{2}\,f_1^*\exp(i\varepsilon_1 t)a_1, \tag{5}$$

$$\frac{da_1}{dt} = i\,\frac{1}{2}\,f_1\exp(-i\varepsilon_1 t)a_0 + i\,\frac{1}{2}\,f_2^*\exp(i\varepsilon_2 t)a_2, \tag{6}$$

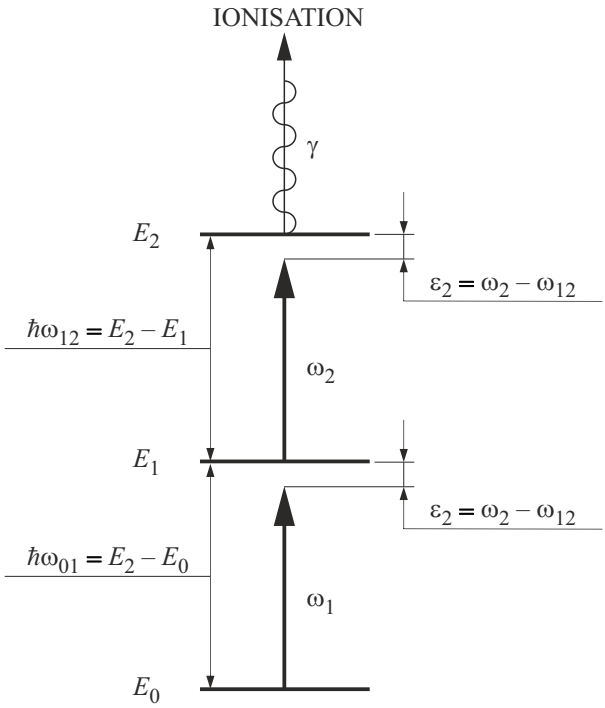

Рис. 5. Схема фотоионизации.

$$\frac{da_2}{dt} = i\,\frac{1}{2}\,f_2\exp(-i\varepsilon_2 t)a_1, \tag{7}$$

где за f_1, f_1^*, f_2 и f_2^* обозначены частоты Раби первого и второго переходов.

Решение этой системы для верхнего возбужденного состояния:

$$a_2(t) = e^{-i\varepsilon_2 t}(C_0 e^{ix_0 t} + C_1 e^{ix_1 t} + C_2 e^{ix_2 t}), \tag{8}$$

где x_0, x_1 и x_2 являются корнями характеристического уравнения

$$x^3 + (\varepsilon_1 - \varepsilon_2)x^2 - \Big(\varepsilon_1\varepsilon_2 + \frac{f_1^2}{4} + \frac{f_2^2}{4}\Big)x + \varepsilon_2\,\frac{f_1^2}{4} - \varepsilon_1\,\frac{f_2^2}{4} = 0, \tag{9}$$

а константы C_0, C_1 и C_2, соответствующие начальным условиям

$$a_0(t=0) = 1;\ a_1(t=0) = a_2(t=0) = 0, \tag{10}$$

равны [12]:

$$C_0 = \frac{f_1 f_2}{4(x_0 - x_1)(x_0 - x_2)}, \tag{11}$$

$$C_1 = \frac{f_1 f_2}{4(x_1 - x_0)(x_1 - x_2)}, \tag{12}$$

$$C_2 = \frac{f_1 f_2}{4(x_2 - x_0)(x_2 - x_1)}. \tag{13}$$

Таблица 2. Результаты эксперимента для целевого изотопа ^{176}Lu

Угол γ	$P_1 = 35\,\mathrm{mW/cm^2}$, $P_2 = 22\,\mathrm{mW/cm^2}$, $P_3 = 2.25\,\mathrm{W/cm^2}$		$P_1 = 68\,\mathrm{mW/cm^2}$, $P_2 = 26\,\mathrm{mW/cm^2}$, $P_3 = 2.25\,\mathrm{W/cm^2}$	
	Сигнал	Концентрация	Сигнал	Концентрация
−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

Решение существенно облегчается тем обстоятельством, что при лазерном разделении изотопов интенсивности лазерного излучения на первом и втором переходах выбираются таким образом, чтобы частоты Раби на первом и втором переходах были одинаковы, чтобы обеспечить максимальную заселенность второго возбужденного состояния и соответственно — максимально эффективную фотоионизацию целевого изотопа. В рассматриваемом эксперименте интенсивности на первых двух ступенях выбирались таким образом, чтобы по возможности обеспечивать равенство частот Раби, хотя в первом наборе имел место небольшой избыток интенсивности второй ступени. 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 частоты Раби:

$$f = \frac{|d_{F\grave{F}}|}{\hbar}\sqrt{\frac{8\pi I}{c}}, \tag{14}$$

где $d_{F\grave{F}}$ — проекция вектора дипольного момента на направление E_0, $I\,[\mathrm{W/cm^2}]$ — интенсивность лазерного излучения и $c\,[\mathrm{cm/s}]$ — скорость света. Матричный элемент дипольного момента перехода $d_{F\grave{F}}$ между состояниями сверхтонкой структуры $I, J, F, M \to I, \grave{J}, \grave{F}, \grave{M}$ выражается через приведенный матричный элемент $\langle J \parallel D \parallel \acute{J}\rangle$ по формуле [13]:

$$d_{F\grave{F}} = (-1)^{F-M}\begin{pmatrix} F & 1 & \grave{F} \\ -M & 0 & \grave{M}\end{pmatrix}(-1)^{I+J+F+1}$$

$$\times\sqrt{(2F+1)(2\grave{F}+1)}\begin{Bmatrix} J & 1 & \grave{J} \\ \grave{F} & I & F\end{Bmatrix}\langle J \parallel D \parallel \acute{J}\rangle, \tag{15}$$

где F и $\grave{F}$ — квантовые числа полного механического момента атома (ядра и электронов), $\grave{M}$ и M — их проекции, $\grave{J}$ и J — квантовые числа полного углового момента электронов, I — спин ядра. Элементы

$$\begin{pmatrix} F & 1 & \grave{F} \\ -M & 0 & \grave{M}\end{pmatrix} \text{ и } \begin{Bmatrix} J & 1 & \grave{J} \\ \grave{F} & I & F\end{Bmatrix}$$

представляет собой $3j$- и $6j$-символы Вигнера соответственно [14,15]. В табл. 3 приведены значения квантовых чисел и значений $6j$-символов Вигнера для используемого канала 8.5−9.5−8.5−7.5 фотоионизации целевого изотопа ^{176}Lu и для наиболее вероятного канала 5−6−5−4 фотоионизации нецелевого изотопа ^{175}Lu. Из таблицы видно, что значения сомножителей оказываются одинаковыми для первого и второго переходов. При использовании линейно поляризованного излучения осуществляются переходы между проекциями с одинаковым значением: $M = \grave{M}$. Значения $3j$-символов Вигнера для проекций переходов представлены в табл. 4 и 5 для целевого ^{176}Lu и нецелевого ^{175}Lu изотопов соответственно. Из приведенных данных видно, что если интенсивности лазерного излучения выбраны так, что частоты Раби на первом и втором переходах одинаковы для одной проекции, то они одинаковы и для всех остальных проекций для целевого и нецелевого изотопов. Это обстоятельство позволяет использовать одну усредненную частоту Раби для всех проекций и для обоих изотопов.

В случае равенства частот Раби характеристическое уравнение (9) преобразуется:

$$x^3 + (\varepsilon_1 - \varepsilon_2)x^2 - \left(\varepsilon_1\varepsilon_2 + \frac{f^2}{2}\right)x + (\varepsilon_2 - \varepsilon_1)\frac{f^2}{4} = 0. \tag{16}$$

Рассматривая целевой изотоп ^{176}Lu, мы полагаем $\varepsilon_1 = \varepsilon_2 = \varepsilon$ и корни (11) равны:

$$x_0 = 0,$$

Таблица 3. Значения квантовых чисел и $6j$-символов Вигнера

Квантовое число	^{176}Lu		^{175}Lu	
	$^2D_{3/2}-F^o_{5/2}$	$^4F^o_{5/2}-^4D_{3/2}$	$^2D_{3/2}-F^o_{5/2}$	$^4F^o_{5/2}-^4D_{3/2}$
J	3/2	5/2	3/2	5/2
$\grave{J}$	5/2	3/2	5/2	3/2
F	8.5	9.5	5	6
$\grave{F}$	9.5	8.5	6	5
I	7	7	7/2	7/2
$\begin{Bmatrix} J & 1 & \grave{J} \\ \grave{F} & I & F \end{Bmatrix}$	$-\frac{1}{6}\sqrt{\frac{1}{3}} = 0.096$	$-\frac{1}{6}\sqrt{\frac{1}{3}}$	$\sqrt{\frac{1}{66}} = 0.123$	$\sqrt{\frac{1}{66}}$
$\sqrt{(2F+1)(2\grave{F}+1)}$	$\sqrt{323} = 17.97$	$\sqrt{323}$	$\sqrt{143} = 11.96$	$\sqrt{143}$

Таблица 4. Абсолютные значения $3j$-символов Вигнера для переходов по каналу 8.5–9.5–8.5 ($^2D_{3/2}-F^o_{5/2}-^4D_{3/2}$) целевого изотопа ^{176}Lu

$M = \grave{M}$	1/2	3/2	5/2	7/2	9/2	11/2	13/2	15/2	17/2
$\begin{pmatrix} F & 1 & \grave{F} \\ -M & 0 & \grave{M} \end{pmatrix}$	0.162	0.160	0.157	0.151	0.143	0.132	0.118	0.100	0.073

$$x_1 = \sqrt{\varepsilon^2 + \frac{f^2}{2}},$$
$$x_2 = -\sqrt{\varepsilon^2 + \frac{f^2}{2}}. \quad (17)$$

Константы (11)–(13) запишутся в виде

$$C_0 = -\frac{f^2}{4(\varepsilon^2 + \frac{f^2}{2})}, \quad (18)$$

$$C_1 = \frac{f^2}{8(\varepsilon^2 + \frac{f^2}{2})}, \quad (19)$$

$$C_2 = \frac{f^2}{8(\varepsilon^2 + \frac{f^2}{2})}, \quad (20)$$

Амплитуда вероятности верхнего возбужденного состояния $a_2(t)$

$$a_2(t) = \frac{f^2}{4\left(\varepsilon^2 + \frac{f^2}{2}\right)} \times \left(\frac{e^{i\left(\sqrt{\varepsilon^2+\frac{f^2}{2}}-\varepsilon\right)t} + e^{-i\left(\sqrt{\varepsilon^2+\frac{f^2}{2}}+\varepsilon\right)t}}{2} - e^{-i\varepsilon t}\right), \quad (21)$$

а вероятность $W_2(t) = |a_2 a_2^*|$ обнаружить частицу в верхнем возбужденном состоянии равна

$$W_2(t) = \frac{f^4}{16\left(\varepsilon^2 + \frac{f^2}{2}\right)^2}\left(\frac{3}{2} + \frac{1}{2}\cos 2\sqrt{\varepsilon^2 + \frac{f^2}{2}}t - 2\cos\sqrt{\varepsilon^2 + \frac{f^2}{2}}t\right). \quad (22)$$

Усредненное по времени значение $W_2(t)$ равно

$$\overline{W_2(\varepsilon)} = \frac{3}{32}\frac{f^4}{\left(\varepsilon^2 + \frac{f^2}{2}\right)^2}. \quad (23)$$

Для оценки фотоионизации нецелевого изотопа ^{175}Lu можно при невысоких значениях частоты Раби:

$$|\varepsilon_1|, \quad |\varepsilon_2| \gg f, \quad (24)$$

воспользоваться приближенными корнями:

$$x_0 \approx -\varepsilon_1,$$
$$x_1 \approx \frac{\varepsilon_2}{2} + \sqrt{\left(\frac{\varepsilon_2}{2}\right)^2 + \frac{f^2}{2}},$$
$$x_2 \approx \frac{\varepsilon_2}{2} - \sqrt{\left(\frac{\varepsilon_2}{2}\right)^2 + \frac{f^2}{2}}. \quad (25)$$

Соответственно константы (11)–(13) запишутся в виде

$$C_0 = \frac{f^2}{4\left(\varepsilon_1^2 + \varepsilon_1\varepsilon_2 - \frac{f^2}{2}\right)}, \quad (26)$$

$$C_1 = \frac{f^2}{8\left(\varepsilon_1 + \frac{\varepsilon_2}{2} + \sqrt{\left(\frac{\varepsilon_2}{2}\right)^2 + \frac{f^2}{2}}\right)\sqrt{\left(\frac{\varepsilon_2}{2}\right)^2 + \frac{f^2}{2}}} = \theta_+, \quad (27)$$

$$C_2 = -\frac{f^2}{8\left(\varepsilon_1 + \frac{\varepsilon_2}{2} - \sqrt{\left(\frac{\varepsilon_2}{2}\right)^2 + \frac{f^2}{2}}\right)\sqrt{\left(\frac{\varepsilon_2}{2}\right)^2 + \frac{f^2}{2}}} = -\theta_-, \quad (28)$$

Таблица 5. Абсолютные значения $3j$-символов Вигнера для переходов по каналу 5–6–5 $(^2D_{3/2}-F^o_{5/2}-^4D_{3/2})$ нецелевого изотопа ^{175}Lu

$M = \grave{M}$	0	1	2	3	4	5
$\begin{pmatrix} F & 1 & \grave{F} \\ -M & 0 & \grave{M} \end{pmatrix}$	0.205	0.202	0.193	0.177	0.153	0.113

Амплитуда вероятности верхнего возбужденного состояния $a_2(t)$

$$a_2(t) = \frac{f^2 e^{-i\left(\varepsilon_1+\varepsilon_2\right)t}}{4\left(\varepsilon_1^2+\varepsilon_1\varepsilon_2-\frac{f^2}{2}\right)}$$

$$+\theta_+ e^{i\left(\frac{\varepsilon_2}{2}+\sqrt{\left(\frac{\varepsilon_2}{2}\right)^2+\frac{f^2}{2}}\right)t}+\theta_- e^{i\left(\frac{\varepsilon_2}{2}-\sqrt{\left(\frac{\varepsilon_2}{2}\right)^2+\frac{f^2}{2}}\right)t}. \quad (29)$$

Вероятность $W_2(t) = |a_2 a_2^*|$ обнаружить частицу в верхнем возбужденном состоянии равна

$$W_2(t) = \frac{f^4}{16\left(\varepsilon_1^2+\varepsilon_1\varepsilon_2-\frac{f^2}{2}\right)^2}+\theta_+^2+\theta_-^2$$

$$+\theta_+\cos\left(\varepsilon_1+\frac{\varepsilon_2}{2}+\sqrt{\left(\frac{\varepsilon_2}{2}\right)^2+\frac{f^2}{2}}\right)t$$

$$-\theta_-\cos\left(\varepsilon_1+\frac{\varepsilon_2}{2}-\sqrt{\left(\frac{\varepsilon_2}{2}\right)^2+\frac{f^2}{2}}\right)t$$

$$-2\theta_+\theta_-\cos 2\left(\sqrt{\left(\frac{\varepsilon_2}{2}\right)^2+\frac{f^2}{2}}\right)t. \quad (30)$$

Усредняя $W_2(t)$ по времени, получаем

$$\overline{W_2(\varepsilon_1,\varepsilon_2)} = \frac{f^4}{16\left(\varepsilon_1^2+\varepsilon_1\varepsilon_2-\frac{f^2}{2}\right)^2}+\theta_+^2+\theta_-^2. \quad (31)$$

Следует отметить, что приближенное решение (30) переходит в точное при приближении к двухфотонному гребню ($\varepsilon_1 \sim -\varepsilon_2$) и становится справедливым уже при любом соотношении ε и f.

На рис. 6 представлены экспериментальные и теоретические зависимости фотоионного сигнала целевого изотопа и концентрации целевого изотопа в ансамбле фотоионов при средних плотностях мощности на первом, втором и третьем переходах $P_1 = 35\,\mathrm{mW/cm^2}$, $P_2 = 22\,\mathrm{mW/cm^2}$ и $P_3 = 2.25\,\mathrm{W/cm^2}$ соответственно. На рис. 7 представлены аналогичные результаты при средних плотностях мощности на первом, втором и третьем переходах $P_1 = 68\,\mathrm{mW/cm^2}$, $P_2 = 26\,\mathrm{mW/cm^2}$ и $P_3 = 2.25\,\mathrm{W/cm^2}$ соответственно. Теоретические кривые для сигнала целевого изотопа получены аппроксимацией экспериментальной зависимости формулой (23) методом

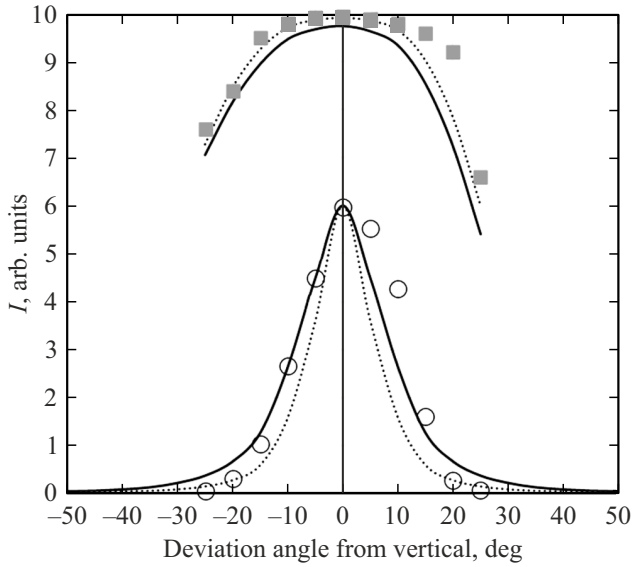

Рис. 6. Экспериментальная зависимость сигнала (относительные значения) целевого изотопа ^{176}Lu (кружки) и концентрации ^{176}Lu (квадраты) от угла отклонения при средних плотностях мощности на первом, втором и третьем переходах $P_1 = 35\,\mathrm{mW/cm^2}$, $P_2 = 22\,\mathrm{mW/cm^2}$ и $P_3 = 2.25\,\mathrm{W/cm^2}$ соответственно. Расчет при частоте Раби $f = 311$ (сплошные кривые) и 227 MHz (пунктирные кривые).

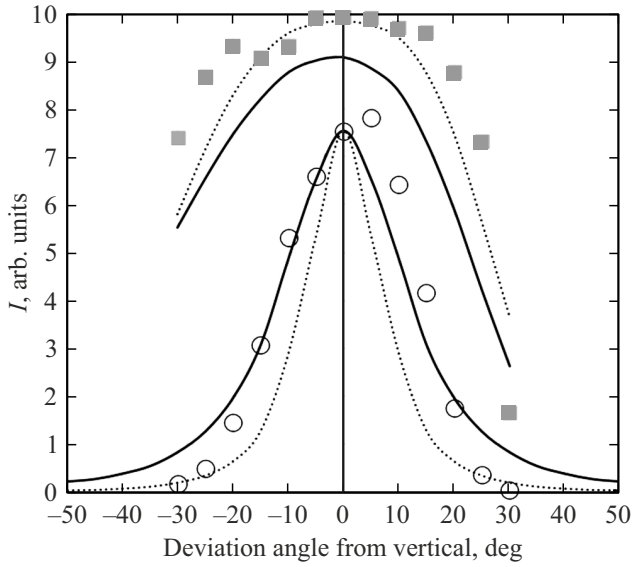

Рис. 7. Экспериментальная зависимость сигнала (относительные значения) целевого изотопа ^{176}Lu (кружки) и концентрации ^{176}Lu (квадраты) от угла отклонения при средних плотностях мощности на первом, втором и третьем переходах $P_1 = 68\,\mathrm{mW/cm^2}$, $P_2 = 26\,\mathrm{mW/cm^2}$ и $P_3 = 2.25\,\mathrm{W/cm^2}$ соответственно. Расчет при частоте Раби $f = 448$ (сплошные кривые) и 283 MHz (пунктирные кривые).

наименьших квадратов (сплошная линия). Видно, что при такой аппроксимации крайние точки, соответствующие углам $\pm 20°$, $\pm 25°$ и $\pm 30°$, оказываются значительно

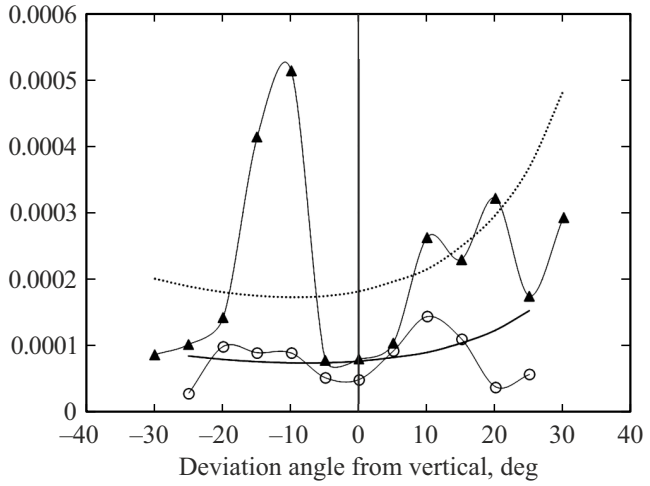

Рис. 8. Зависимость фотоионного тока нецелевого изотопа от угла отклонения атомов при средних плотностях мощности на первом, втором и третьем переходах $P_1 = 35\,\mathrm{mW/cm^2}$, $P_2 = 22\,\mathrm{mW/cm^2}$ и $P_3 = 2.25\,\mathrm{W/cm^2}$ соответственно (кружки) и при $P_1 = 68\,\mathrm{mW/cm^2}$, $P_2 = 26\,\mathrm{mW/cm^2}$ и $P_3 = 2.25\,\mathrm{W/cm^2}$ (треугольники). Рассчитанные значения параметра $(\overline{W_2(\varepsilon_1, \varepsilon_2)})_{175}$ при частоте Раби $f = 227$ (сплошная кривая) и 283 MHz (пунктирная кривая).

ниже кривой. Это можно объяснить тем, что усредненный по множеству импульсов контур взаимодействия лазерного излучения с ансамблем атомов в центральной части определяется флуктуациями частоты лазерного излучения от импульса к импульсу в то время как в течение одного импульса ширина контура значительно меньше. Если произвести аппроксимацию с использованием крайних точек (исключив точки $\pm 5^\circ$, $\pm 10^\circ$ и $\pm 15^\circ$), то полученное значение частоты Раби оказывается заметно ниже, а кривая концентрации, рассчитанная по формуле

$$C_{176} = \frac{(\overline{W_2(\varepsilon)})_{176} 2.59}{(\overline{W_2(\varepsilon)})_{176} 2.59 + (\overline{W_2(\varepsilon_1, \varepsilon_2)})_{176} 97.41}, \qquad (32)$$

где 2.59 % и 97.41 % — природные концентрации изотопов ^{176}Lu и ^{175}Lu соответственно, оказывается заметно ближе к экспериментальным значениям. Тот факт, что экспериментальные значения концентрации оказываются заметно выше оценочных, объясняется тем, что теоретическая модель не учитывает резонансный характер третьей ступени фотоионизации через автоионизационное состояние, что увеличивает экспериментальную селективность.

Сравнение рис. 6 и 7 показывает, что имеет место возрастание фотоионного тока целевого изотопа с одновременным увеличением интенсивности лазерного излучения на первой и второй ступенях. Это, по-видимому, связано с влиянием спонтанного распада второго возбужденного состояния в первое возбужденное состояние, что принципиально не может быть учтено в рамках рассматриваемой теоретической модели.

На рис. 8 представлены зависимости фототока нецелевого изотопа ^{175}Lu. Наблюдается значительный прирост фототока при настройках длин волн лазерного излучения, соответствующих углам -10° и -15°, что может быть связано с особенностями аппаратного спектра генераторов на красителях.

Выводы

Проведенное экспериментальное исследование проясняет меру снижения эффективности и селективности фотоионизации изотопа ^{175}Lu при увеличении угла отклонения линии пролета атома от перпендикуляра к направлению лазерного луча. Полученные данные позволяют определить интегральную селективность и эффективность фотоионизации при проектировании рабочего объема разделительной установки. Простые аналитические оценки на основе когерентной фотоионизации трехуровневой системы дают удовлетворительное согласие с экспериментальными результатами. По-видимому, при математическом моделировании наиболее продуктивным подходом является представление лазерного излучения как монохроматического, испытывающего от импульса к импульсу стохастические колебания частоты около резонансной частоты целевого изотопа с нормальным распределением шириной 100–200 MHz. Для учета влияния спонтанного распада второго возбужденного состояния в первое возбужденное состояние необходимо применять аппарат матрицы плотности и желательно производить расчет отдельно для каждого сочетания проекций M полного момента атома. При этом можно рассматривать трехуровневую систему, а дополнительную селективность, обусловленную резонансной фотоионизацией через автоионизационное состояние, можно ввести за счет различия констант ионизации для целевого и нецелевого изотопов. Однако, принимая во внимание результаты работы [10] по исследованию эффекта Аутлера-Таунса автоионизационного состояния, наиболее интересным представляется исследование четырехуровневой системы, испытывающей когерентное взаимодействие с трехчастотным лазерным излучением, каждая частота которого независимо от других флуктуирует от импульса к импульсу вокруг резонансного значения.

Финансирование работы

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

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. Labozina, S.M. Mironov, V.A. Firsov, G.O. Tsvetkov, V.Ya. Panchenko. Physics-Uspekhi, **66** (5), 518–533 (2022). DOI: 10.33367/UFNe.2021.12.039140].

[2] 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. Labozina, K.A. Makoveeva, S.M. Mironov, V.A. Firsov, G.O. Tsvetkov, V.Ya. Panchenko. Radiochemistry, **64** (1), 49 (2022). DOI: 10.1134/S1066362222010088].

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

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

[5] А.Б. Дьячков, А.А. Горкунов, А.В. Лабозин, С.М. Миронов, В.А. Фирсов, Г.О. Цветков, В.Я. Панченко. Опт. и спектр., **130** (12), 65 (2022). DOI: 10.21883/OS.2022.12.54083.3034-22 [A.B. D'yachkov, A.A. Gorkunov, A.V. Labozin, S.M. Mironov, V.A. Firsov, G.O. Tsvetkov, V.Ya. Panchenko. Opt. Spectrosc., **130** (12), 1525 (2022). DOI: 10.21883/EOS.2022.12.55237.3034-22].

[6] А.Б. Дьячков, А.А. Горкунов, А.В. Лабозин, С.М. Миронов, В.Я. Панченко, В.А. Фирсов, Г.О. Цветков. Квант. электрон., **48** (1), 75 (2018). [A.B. D'yachkov, A.A. Gorkunov, A.V. Labozin, S.M. Mironov, V.Ya. Panchenko, V.A. Firsov, G.O. Tsvetkov. Quant. Electron., **48** (1), 75 (2018). DOI: 10.1070/QEL16493].

[7] A.B. D'yachkov, A.A.Gorkunov, A.V. Labozin, S.M. Mironov, V.Ya. Panchenko, V.A. Firsov, G.O. Tsvetkov. Instruments Exp. Tech., **61** (4), 548 (2018). DOI: 10.1134/S0020441218040048

[8] А.Б. Дьячков, А.А. Горкунов, А.В. Лабозин, С.М. Миронов, В.Я. Панченко, В.А. Фирсов, Г.О. Цветков. Квант. электрон., **48** (11), 1043 (2018). [A.B. D'yachkov, A.A. Gorkunov, A.V. Labozin, S.M. Mironov, V.Ya. Panchenko, V.A. Firsov, G.O. Tsvetkov. Quant. Electron., **48** (11), 1043 (2018). DOI: 10.1070/QEL16793].

[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 (2018). DOI: 10.1070/QEL18029].

[10] А.Б. Дьячков, А.А. Горкунов, 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].

[11] Л.Д. Ландау, Е.М. Лифшиц. *Квантовая механика. Нерелятивистская теория* (ГИФМЛ, М.,1963). [E.M. Lifshitz, L.D. Landau. *Quantum Mechanics; Nonrelativistic Theory* (Pergamon Press, 1965)].

[12] И.С. Григорьев, Э.А. Манькин, Г.Г. Шаталова. *Теория трехступенчатой ионизации атомов в разреженном газе в лазерном поле* (Отчет ИАЭ 70/7084, 1996).

[13] B. Shore. Acta Phys. Slovaca. Rev. Tutorials, 58, 243 (2008).

[14] И.И. Собельман. *Введение в теорию атомных спектров* (Физматгиз, М., 1963).

[15] O. Axner, J.O. Gustafsson, N. Omenetto, J.D. Winefordner. Spectrochim. Acta B, **59**, 1 (2004).