ВОЗДЕЙСТВИЕ ЛАЗЕРНОГО ИЗЛУЧЕНИЯ НА ВЕЩЕСТВО

Эффект Аутлера – Таунса, частота Раби и определение характеристик распада возбужденных состояний в схеме фотоионизации лютеция

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

Проведено исследование расщепления первого и второго переходов в схеме фотоионизации лютеция $5d6s^{22}D_{3/2}$ – $5d6s6p^4F^o_{5/2}$ – $5d6s7s^4D_{3/2}$ – $(53375\ см^{-1})^o_{1/2}$ в широком диапазоне интенсивностей лазерного излучения, определены значения частот Раби в зависимости от интенсивности излучения. На основе этих результатов для первого и второго переходов получены коэффициенты ветвления распада 0.54 и 0.41 соответственно.

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

1. Введение

Подробное исследование схемы фотоионизации лютеция $5d6s^{22}D_{3/2}$ – $5d6s6p^4F^o_{5/2}$ – $5d6s7s^4D_{3/2}$ – $(53375\ см^{-1})^o_{1/2}$ имеет важное прикладное значение, поскольку данная схема, обладая высокими селективностью и эффективностью фотоионизации ^{177}Lu и ^{177m}Lu, может быть использована для промышленного получения этих радионуклидов для применения в медицине [1].

Эффективность фотоионизации, а также выбор надлежащих интенсивностей лазерного излучения в значительной степени зависят от характеристик распада возбужденных состояний. Если время жизни уровня сравнимо с длительностью лазерного импульса или меньше ее, то значительная часть частиц спонтанно покидает возбужденный уровень. При этом критически важным является то, происходит ли распад обратно в предыдущее состояние или частица переходит в другое, стороннее состояние, не участвующее в схеме фотоионизации. В первом случае частица может быть повторно возбуждена лазерным излучением и в дальнейшем дать вклад в продукт разделения, во втором случае частица оказывается «потерянной» и степень извлечения целевого изотопа снижается. В частности, для рассматриваемой схемы (рис.1) время жизни первого возбужденного состояния $5d6s6p^4F^o_{5/2}$ равно 472 нс [2] и распад (при длительности импульса 20 нс) существенно не влияет на кинетику фотоионизации. Прямые измерения показывают, что время жизни второго возбужденного уровня $5d6s7s^4D_{3/2}$ равно 11.5 нс [3], и это заставляет значительно увеличивать интенсивность лазерного излучения третьей ступени для предотвращения потерь, связанных с распадом.

Известно, что при высокой интенсивности наблюдается хорошо регистрируемое расщепление линии – эффект Аутлера – Таунса, а величина расщепления зависит от интенсивности лазерного излучения [4]. Теоретические исследования показывают, что при одновременном воздействии на трехуровневую атомную систему лазерного излучения с частотами ν_{12} и ν_{23}, соответствующими первому и второму переходам, населенности уровней 1, 2 и 3 испытывают колебания с характерными частотами Ω_{12} и Ω_{23}. При $\Omega_{12} \ll \Omega_{23}$ происходит расщепление перехода 2 – 3 и при сканировании частоты ν_{12} наблюдаются два пика амплитуды населенности второго возбужденного состояния 3, разделенные на

$$\Delta\nu_{12} = \sqrt{(\Delta\nu_{23}^2 + \Omega_{23}^2)}, \qquad (1)$$

где $\Delta\nu_{12}$ и $\Delta\nu_{23}$ – отстройки частоты лазерного излучения от центров первого и второго переходов соответственно (в МГц); Ω_{23} – частота Раби второго перехода (в МГц) [5, 6]. Таким образом, при настройке частоты лазерного излучения в резонанс с частотой второго перехода ($\Delta\nu_{23}$ = 0) величина расщепления оказывается равной частоте Раби, что предоставляет возможность экспериментального измерения этой частоты. Если из состояния 3 возможен распад не только в состояние 2, но и в ряд других состояний, то измерения частоты Раби при данной интенсивности позволяют определить коэффициент Эйнштейна выделенного перехода 3 – 2 и, следовательно, парциальную компоненту распада возбужденного состояния 3, связанную исключительно со спонтанным переходом в состояние 2, что в сочетании с интегральным временем жизни уровня (суммой всех возможных распадов состояния 3) дает соотношение вероятностей распада в предыдущее состояние и в состояние, находящееся вне схемы фотоионизации, и позволяет оценить потери, связанные с распадом.

2. Эксперимент

Исследования расщеплений переходов ^{175}Lu на первой и второй ступенях схемы фотоионизации $5d6s^{22}D_{3/2}$ – $5d6s6p^4F^o_{5/2}$ – $5d6s7s^4D_{3/2}$ – $(53375\ см^{-1})^o_{1/2}$ проводились методом лазерной резонансной ионизационной масс-спектроскопии (LRIMS). Для резонансного возбуждения и ионизации атомов использовалось излучение трех импульсных одномодовых лазеров на красителях со спек-

А.Б.Дьячков, А.А.Горкунов, А.В.Лабозин, С.М.Миронов, В.А.Фирсов, Г.О.Цветков, В.Я.Панченко. Национальный исследовательский центр «Курчатовский институт», Россия, 123182 Москва, пл. Акад. Курчатова,1; e-mail: Tsvetkov_GO@nrcki.ru

Поступила в редакцию 8 ноября 2021 г.

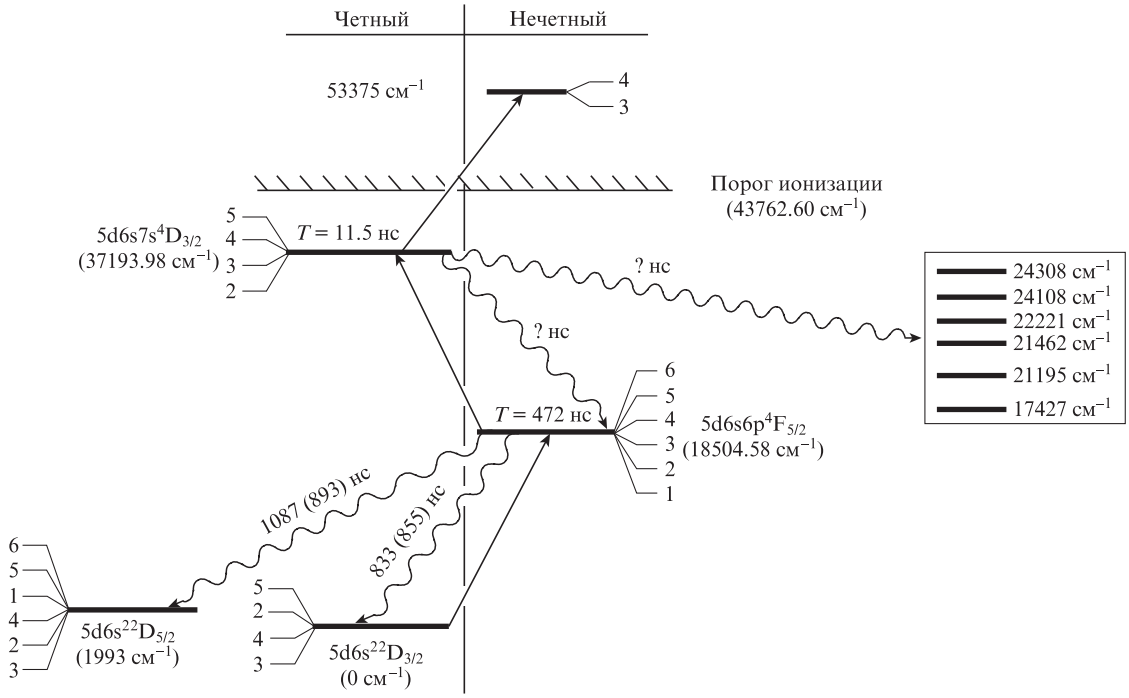

Рис.1. Схема фотоионизации лютеция.

тральной шириной линии генерации 100–150 МГц (FWHM), накачиваемых лазерами на парах меди, частота следования импульсов составляла 10 кГц. Для регистрации фотоионов применялся коммерческий квадрупольный масс-спектрометр МС-7302. Технические параметры и особенности экспериментальной установки детально описаны в работах [7, 8]. В ходе исследования частота лазерного излучения второй ступени настраивалась в резонанс с переходом. Плотность средней мощности лазерного излучения первой ступени снижалась до 0.01 от уровня насыщения. Длина волны излучения первой ступени сканировалась в области первого перехода. Ионизация атомов из второго возбужденного состояния осуществлялась в континуум лазерным излучением третьей ступени с длиной волны, отстроенной от длины волны автоионизационного состояния на 1 Å. Типичная зависимость фотоионного тока от частоты представлена на рис.2, а зависимость расщепления от средней плотности мощности лазерного излучения второй ступени – на рис.3.

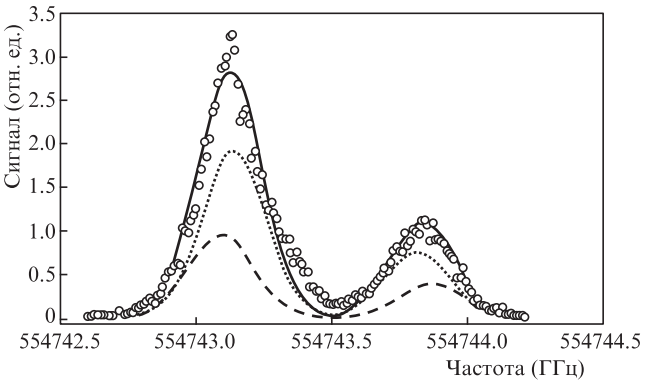

Рис.2. Расщепление для второго перехода 5d6s6p $^4\mathrm{F}^{\mathrm{o}}_{5/2}$ – 5d6s7s^{4}D$_{3/2}$ (F = 1, F' = 2). Штриховая кривая – распределения Гаусса для правого и левого пиков проекции 00, пунктирная кривая соответствует проекциям –1–1 и 11, сплошная кривая – сумма всех проекций. Точки – эксперимент.

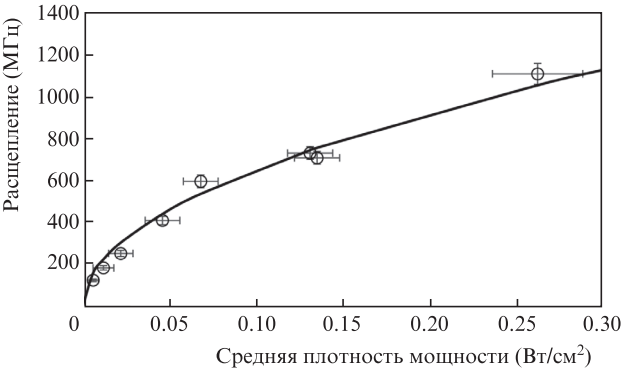

Рис.3. Зависимость величины расщепления для перехода 5d6s6p $^4\mathrm{F}^{\mathrm{o}}_{5/2}$ – 5d6s7s^{4}D$_{3/2}$ (F = 1, F' = 2) от средней плотности мощности лазерного излучения второй ступени.

3. Результаты и их обсуждение

Для определения связи между частотой Раби второго перехода $^4\mathrm{F}^{\mathrm{o}}_{5/2}$ – $^4\mathrm{D}_{3/2}$ и характеристиками распада использовалась формула для частоты Раби [9]

$$\hbar\Omega = |d_{FF'}E_0|, \tag{2}$$

где $\boldsymbol{d}_{FF'}$ – оператор вектора дипольного момента перехода из состояния с квантовым числом полного механического момента F' в состояние с квантовым числом F, а $\boldsymbol{E}_0$ – электрическое поле электромагнитной волны лазерного излучения. Считая, что лазерное излучение представляет собой плоскую монохроматическую волну $E(t) = E_0\cos\omega t$ с линейной поляризацией ($E_0 = \sqrt{8\pi I_{\mathrm{L}}/c}$), для частоты Раби получаем выражение

$$\hbar\Omega = |d_{FF'}|\sqrt{\frac{8\pi I_{\mathrm{L}}}{c}}, \tag{3}$$

где $d_{FF'}$ – проекция вектора дипольного момента на вектор $\boldsymbol{E}_0$; I_{L} – интенсивность лазерного излучения (в Вт/см^2); c –

скорость света (в см/с). Матричный элемент дипольного момента перехода $d_{FF'}$ из состояния сверхтонкой структуры с квантовыми числами I, J, F, M в состояние с квантовыми числами I, J', F', M' выражается через приведенный матричный элемент $\langle J\|D\|J'\rangle$ по формуле [5]

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

$$\times\sqrt{(2F+1)(2F'+1)}\begin{Bmatrix} J & 1 & J' \\ F' & I & F \end{Bmatrix}\langle J\|D\|J'\rangle, \qquad (4)$$

где M' и M – проекции полных моментов F' и F; J' и J – квантовые числа суммарного орбитального и спинового моментов электронов; I – спин ядра. Элементы

$$\begin{pmatrix} F & 1 & F' \\ -M & 0 & M' \end{pmatrix}, \quad \begin{Bmatrix} J & 1 & J' \\ F' & I & F \end{Bmatrix}$$

представляют собой 3j- и 6j-символы Вигнера соответственно [10, 11]. В свою очередь, приведенный дипольный момент $\langle J\|D\|J'\rangle$ выражается через характеристики перехода [5, 12]:

$$|\langle J\|D\|J'\rangle|^2 = \frac{3\hbar\lambda^3(2J'+1)}{4\cdot 8\pi^3}A(J'\to J), \qquad (5)$$

где $A(J'\to J)$ – коэффициент Эйнштейна соответствующего перехода. Значения квантовых чисел и сомножителей в формуле (4) для исследованных первого перехода в состояние $5d6s6p\,^4F^o_{5/2}$ из метастабильного состояния $5d6s\,^2D_{5/2}$ и второго перехода $5d6s6p\,^4F^o_{5/2} - 5d6s7s\,^4D_{3/2}$ атома ^{175}Lu приведены в табл.1.

При линейной поляризации ($\Delta M = 0$) возможны переходы с тремя значениями проекций: $M = M' = -1, 1$ и $M = M' = 0$. Подставляя в (3) найденные значения сомножителей, получаем для проекций $M = M' = 1$ для второго перехода $^4F^o_{5/2} - {}^4D_{3/2}$ (λ = 5350 Å) частоту

Табл.1. Значения квантовых чисел и сомножителей в формуле (4) для начального и конечного состояний исследованных переходов.

Квантовые числа и сомножители	$^2D_{3/2}-{}^4F^o_{5/2}$ (λ = 5404 Å)	$^2D_{5/2}-{}^4F^o_{5/2}$ (λ = 6055 Å)	$^4F^o_{5/2}-{}^4D_{3/2}$ (λ = 5350 Å)
J	3/2	5/2	5/2
J'	5/2	5/2	3/2
F	2	1	1
F'	1	1	2
I	7/2	7/2	7/2
$\begin{Bmatrix} J & 1 & J' \\ F' & I & F \end{Bmatrix}$	$-\sqrt{\frac{1}{30}}$	$-\frac{1}{6}\sqrt{\frac{5}{7}}$	$-\sqrt{\frac{1}{30}}$
$\sqrt{(2F+1)(2F'+1)}$	$\sqrt{15}$	3	$\sqrt{15}$
$\begin{pmatrix} F & 1 & F' \\ -M & 0 & M' \end{pmatrix}$ 11	$-\sqrt{\frac{1}{10}}$	$-\sqrt{\frac{1}{6}}$	$-\sqrt{\frac{1}{10}}$
$\begin{pmatrix} F & 1 & F' \\ -M & 0 & M' \end{pmatrix}$ 00	$-\sqrt{\frac{2}{15}}$	0	$-\sqrt{\frac{2}{15}}$
$\begin{pmatrix} F & 1 & F' \\ -M & 0 & M' \end{pmatrix}$ –1–1	$-\sqrt{\frac{1}{10}}$	$-\sqrt{\frac{1}{6}}$	$-\sqrt{\frac{1}{10}}$

$$\Omega_{23} = \Delta\nu_{12}(M = M' = 1) = \Delta\nu_{12}(M = M' = -1)$$

$$= \sqrt{\frac{1}{20}}\sqrt{\frac{3\lambda^3 P(2J'+1)}{4\pi^2\hbar cf}\frac{A_2(3/2\to 5/2)}{\tau}}, \qquad (6)$$

где интенсивность лазерного излучения

$$I_L = \frac{P}{f\tau} \qquad (7)$$

выражена через среднюю плотность мощности P, частоту следования импульсов f = 10 кГц и эффективную длительность лазерного импульса τ.

Аналогично для проекций $M = M' = 0$ получаем

$$\Omega_{23} = \Delta\nu_{12}(M = M' = 0)$$

$$= \sqrt{\frac{1}{15}}\sqrt{\frac{3\lambda^3 P(2J'+1)}{4\pi^2\hbar cf}\frac{A_2(3/2\to 5/2)}{\tau}}. \qquad (8)$$

Для каждого скана экспериментальная зависимость сигнала от частоты ν сканируемого лазерного излучения аппроксимировалась зависимостью

$$S(\nu) = \sum B_+ G(\nu; \nu_0 + 0.5\Omega(F, M, F', M'))$$

$$+\sum B_- G(\nu; \nu_0 - 0.5\Omega(F, M, F', M')), \qquad (9)$$

где суммирование проводится по всем проекциям перехода, отвечающим условию $\Delta M = 0$ (линейная поляризация); $G(\nu;\ \nu_0)$ – распределение Гаусса с центральной частотой ν_0; B_- и B_+ – амплитудные множители (рис.2). По результатам аппроксимации получено $A(3/2 \to 5/2)/\tau = (1.8 \pm 0.3)\times 10^{15}$ 1/с^2. При длительности лазерного импульса τ = 20 нс это дает коэффициент Эйнштейна $A_2(3/2 \to 5/2) = (3.6 \pm 0.6)\times 10^7$ 1/с, что находится в хорошем соответствии с данными работы [13] (3.201×10^7 1/с). Таким образом, парциальное время жизни второго возбужденного состояния $^4D_{3/2}$ по отношению к распаду в первое возбужденное состояние $^4F^o_{5/2}$ составляет 28 ± 5 нс, что отвечает коэффициенту ветвления 41% ± 6% распада в первое возбужденное состояние $^4F^o_{5/2}$.

Для первого перехода аппроксимация результатов по формуле (9) дает $A_g(5/2 \to 3/2)/\tau = (1.4 \pm 0.2)\times 10^{14}$ 1/с^2 для перехода из основного состояния $^2D_{3/2}$ и $A_m(5/2 \to 5/2)/\tau = (1.2 \pm 0.2)\times 10^{14}$ 1/с^2 для перехода из метастабильного состояния $^2D_{5/2}$ (рис.4). Учитывая, что распад уровня $^4F^o_{5/2}$ может происходить только в основное состояние $^2D_{3/2}$ либо в метастабильное состояние $^2D_{5/2}$, получаем коэффициент ветвления распада в основное состояние 0.54. Это значение хорошо согласуется с данными работ [2] (57% ± 3%) и [13] (51%). Однако при длительности импульса 20 нс мы имеем коэффициенты Эйнштейна $A_g(5/2 \to 3/2) = (0.7 \pm 0.1)\times 10^6$ 1/с для перехода из основного состояния и $A_m(5/2 \to 5/2) = (0.6 \pm 0.1)\times 10^6$ 1/с для перехода из метастабильного состояния, что, в свою очередь, дает для первого возбужденного уровня $^4F^o_{5/2}$ полное время жизни T = 770 ± 70 нс, которое находится в противоречии со значением T = 472 ± 24 нс, приведенным в работе [2], и значением T = 430 ± 20 нс из работы [14]. Такое про-

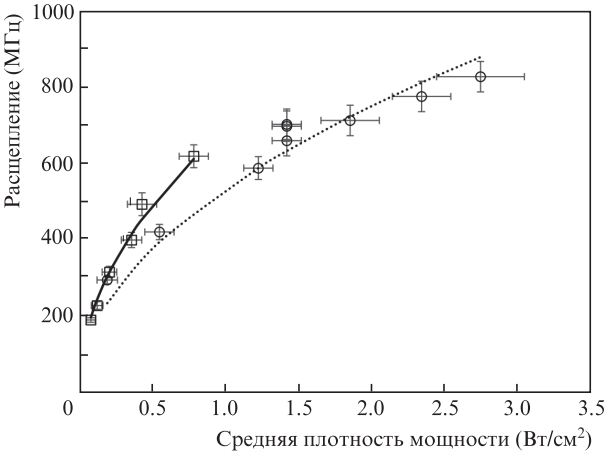

Рис.4. Зависимости величины расщепления от средней плотности мощности лазерного излучения. Сплошная кривая и квадраты соответствуют переходу из основного состояния $^2D_{3/2}-{}^4F^o_{5/2}$ (F = 1, F' = 2) с длиной волны 5404.1632 Å, пунктирная кривая и кружки – переходу из метастабильного состояния $^2D_{5/2}-{}^4F^o_{5/2}$ ($F = F'$ = 1) с длиной волны 6056.8238 Å.

тиворечие может быть связано с тем, что переходы $^2D_{3/2}-{}^4F^o_{5/2}$ из основного состояния и $^2D_{5/2}-{}^4F^o_{5/2}$ из метастабильного состояния являются интеркомбинационными, со сменой значения мультиплетности с 2 на 4, и определение частоты Раби осцилляций населенностей по формуле (3) может быть некорректным. Исходя из представленных результатов можно сделать вывод, что для рассматриваемых интеркомбинационных переходов формула (3) дает завышенные значения частоты Раби.

4. Выводы

Полученные коэффициенты ветвления распада из второго возбужденного состояния показывают, что доля частиц, которые при распаде остаются в схеме фотоионизации, невелика и распад второго возбужденного состояния $5d6s7s^4D_{3/2}$ является основным фактором, ограничивающим степень извлечения целевого изотопа за счет фотоионизации.

Зависимости расщепления переходов от интенсивности лазерного излучения, экспериментально полученные в настоящей работе, характеризуют меру когерентности процессов, происходящих при различных режимах фотоионизации лютеция с применением схемы $5d6s^{22}D_{3/2}-5d6s6p\,^4F^o_{5/2}-5d6s7s^4D_{3/2}-(53375\ см^{-1})^o_{1/2}$. Интенсивности, используемые в нашей работе (средняя плотность мощности 0.01 – 2.5 Вт/см^2), существенно превышают интенсивности, при которых достигается насыщение фототока и которые применяются для селективной фотоионизации изотопов и изомеров лютеция (средняя плотность мощности 0.002 – 0.01 Вт/см^2). В результате становится понятным, что при селективной фотоионизации частота Раби (и соответственно величина расщепления) сравнима с шириной лазерной линии 100 – 150 МГц или меньше ее. В этих условиях режим фотовозбуждения атомов оказывается промежуточным между некогерентным и когерентным режимами, когда осцилляции на частоте Раби могут менять фазу несколько раз за время лазерного импульса и регулярные осцилляции населенностей, присущие когерентному режиму, не успевают сформироваться. В данном режиме вполне корректным и оправданным является применение некогерентного подхода с использованием эффективных сечений для оценки динамики населенностей уровней в процессе фотоионизации.

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

1. Дьячков А.Б., Горкунов А.А., Лабозин А.В., Маковеева К.А., Миронов С.М., Панченко В.Я., Фирсов В.А., Цветков Г.О. *Оптика и спектроскопия*, **128**, 10 (2020) [*Opt. Spectrosc.*, **128**, 6 (2020)].
2. Fedchak J.A., Den Hartog E.A., Lawler J.E., Palmeri P., Quinet P., Biemont E. *Astrophys. J.*, **542**, 1109 (2020).
3. Дьячков А.Б., Горкунов А.А., Лабозин А.В., Миронов С.М., Панченко В.Я., Фирсов В.А., Цветков Г.О. *Квантовая электроника*, **48**, 1043 (2018) [*Quantum Electron.*, **48**, 1043 (2018)].
4. Autler S.H., Townes C.H. *Phys. Rev.*, **100**, 703 (1955).
5. Shore B. *Acta Phys. Slovaca. Rev. Tutorials*, **58**, 243 (2008).
6. Ackerhalt J.R., Eberly J.H., Shore B.W. *Phys. Rev. A*, **19**, 248 (1979).
7. Дьячков А.Б., Горкунов А.А., Лабозин А.В., Миронов С.М., Панченко В.Я., Фирсов В.А., Цветков Г.О. *Квантовая электроника*, **48**, 75 (2018) [*Quantum Electron.*, **48**, 75 (2018)].
8. Дьячков А.Б., Горкунов А.А., Лабозин А.В., Миронов С.М., Панченко В.Я., Фирсов В.А., Цветков Г.О. *ПТЭ*, № 4, 81 (2018) [*Instrum. Exp. Tech.*, **61**, 548 (2018)].
9. Białynicka-Birula Z., Białynicki-Birula I., Eberly J.H., Shore B.W. *Phys. Rev. A,* **16**, 2048 (1977).
10. Собельман И.И. *Введение в теорию атомных спектров* (М.: Физматгиз, 1963).
11. Axner O., Gustafsson J.O., Omenetto N., Winefordner J.D. *Spectrochim. Acta. Part B: Atomic Spectrosc.*, **59**, 1 (2004)
12. Берестецкий В.Б. *Релятивистская квантовая теория* (М.: Наука, 1968, т. 4).
13. https://lweb.cfa.harvard.edu/amp/ampdata/kurucz23/sekur.html.
14. Kwiatkowski M., Teppner U., Zimmermann P. *Z. Naturforsch. Sect. A: J. Phys. Sci.*, **35**, 370 (1980).