钕-150 同位素三步选择性光电离理论研究*

王立德1)2)† 张钧尧1)2) 卢肖勇1)2)

1) (粒子输运与富集技术全国重点实验室, 天津 300180)

2) (核工业理化工程研究院, 天津 300180)

(2025年3月2日收到; 2025年4月3日收到修改稿)

富集钕-150同位素在核工业、科学研究等领域具有重要应用. 基于高效高选择性多步电离路径, 原子蒸 气激光同位素分离法能够实现钕同位素分离, 但现用路径第2步跃迁的同位素位移 (isotope shift, IS) 几乎为 零, 导致产品中 Nd-150 丰度偏低. 本文基于密度矩阵理论建立了通用的三步电离路径选择性光电离模型, 模 型中综合考虑了同位素位移、超精细结构等原子参数和频率、功率、线宽、偏振等激光参数, 可在磁子能级级 别计算原子与激光的相互作用过程. 基于上述模型, 通过与文献数据对比获得了现用路径分支比的最优拟合 值, 评估了现用路径在不同线宽下的 Nd-150 丰度水平; 在仅改变第2步跃迁的前提下构造假定电离路径, 开 展所有钕同位素的电离率计算, 评估不同同位素位移、超精细结构下的 Nd-150 丰度, 指导后续原子光谱实 验. 数值计算发现第二激发态角动量 $J_3 = 6$, 同位素位移 IS_{23,148} ≥ 300 MHz 时, 在 $b_{12} \le 0.5$ GHz, $b_{23} \le 1.0$ GHz, 平行线偏振的典型激光参数下可实现与电磁法相当的 Nd-150 丰度 (> 95%). 在此基础上压窄激光线宽, 能够 在保持电离率的同时获得超过电磁法的 Nd-150 产品. 后续原子光谱实验应着重寻找 IS_{23,148} ≥ 300 MHz, $J_3 = 6$ 的第2步跃迁, 第2步跃迁的约化电偶极矩达到现用路径的 30% 即可满足丰度要求.

关键词: 钕-150,选择性光电离,同位素位移,超精细结构 PACS: 32.10.Fn, 32.80.-t CSTR: 32037.14.aps.74.20250262

DOI: 10.7498/aps.74.20250262

1 引 言

钕 (Nd) 元素有 7 种天然同位素, 如表 1 所示. 富集钕同位素可应用于量子材料、特种能源、医学 等多个领域, 具有很高的经济价值, 如高丰度 Nd-142 或 Nd-143 同位素可掺杂进晶体中以制备固态 量子存储材料^[1,2], 高丰度 Nd-146 靶材经反应堆辐 照后可生产用于放射性同位素电源的 Pm-147^[3], 高丰度 Nd-148 靶材经反应堆辐照后可生产医用治 疗同位素 Pm-149^[4]. 钕天然同位素中, 高丰度 Nd-150 同位素因在核工业、科学研究领域均具有重要 应用, 因此在同位素分离过程中最受关注. 在核工 业领域, Nd-148 法是分析乏燃料燃耗水平的主流标准方法, 而 Nd-150 可用作同位素稀释剂补偿质谱仪的质量歧视效应^[6]. 在科学研究领域, Nd-150 是极少数可发生双中微子双β衰变的同位素之一, 其衰变能 *Q*_{0υββ} 仅次于 Ca-48^[6], 因此可用于开展粒子物理的无中微子双β衰变研究, 目前实验所用的同位素体量已达到千克级^[7].

钕元素所在的镧系元素普遍没有稳定的常 温气态化合物,不能采用气体动力学方法分离同 位素.电磁法虽然能够分离钕同位素,并可达到 68%—97% 丰度水平^[8],但能耗高、经济性差,难以 大规模生产.原子蒸气激光同位素法 (atomic vapor laser isotope separation, AVLIS)^[9] 基于多步电离

^{*} 粒子输运与富集技术全国重点实验室稳定支持基金 (基金号: SYSJJ-2022101) 资助的课题.

[†] 通信作者. E-mail: wld15@tsinghua.org.cn

^{© 2025} 中国物理学会 Chinese Physical Society

Table 1. Natural Nd isotopes.										
钕同位素	Nd-150	Nd-148	Nd-146	Nd-145	Nd-144	Nd-143	Nd-142			
天然丰度c ₀ /%	5.62	5.73	17.22	8.30	23.85	12.17	27.11			
核自旋In	0	0	0	7/2	0	7/2	0			
衰变	$2\nu\beta\beta$ 或 $0\nu\beta\beta$ →Sm-150			_	$\alpha \rightarrow \text{Ce-140}$	_				

圭 1 陆王母同位妻

路径实现原子蒸气中目标同位素的选择性光电离, 非目标同位素则尽可能保持中性,对光致等离子体 施加外电场将离子引出,从而获得高丰度的目标同 位素产品,非常适用于 Nd-150 同位素分离. 俄罗 斯库尔恰托夫研究院采用 $\lambda_1 = 596 \text{ nm} \rightarrow \lambda_2 =$ 579 nm → $\lambda_3 = 640$ nm 的三步电离路径 (即表 2 路径一)^[10,11],首次实现了 Nd-150 同位素的分离, 产率达到 40 mg/h, 但产品丰度仅为 60% [12], 与电 磁法相比仍有一定差距.

表 2 钕同位素三步电离路径

Table 2. The three-step photoionization scheme of Nd isotopes.

电离路径	λ_1/nm	λ_2/nm	λ_3/nm
路径—[10,11]	596	579	640
路径二[16]	588	597	597
路径三[17]	628	560	597
路径四[17]	562	627	597

高效高选择性的光电离路径是激光法的核心, 决定了分离过程核心指标——目标同位素的电离 率和相对于非目标同位素的选择性,前者与产量相 关,后者则决定了产品中目标同位素的丰度.确定 光电离路径需要丰富的原子精细和超精细结构层 次的基础信息,但钕原子结构文献资料有限,特别 是高激发态的同位素位移 (isotope shift, IS)、超精 细结构数据严重缺失。6. 钕原子的第一电离限仅为 5.525 $eV^{[13]}$,可通过 $\lambda_1 = 434 \text{ nm} \rightarrow \lambda_2 = 458 \text{ nm}$ 或 $\lambda_1 = 430 \text{ nm} \rightarrow \lambda_2 = 449 \text{ nm}$ 等双步电离路径 电离,虽然上述路径的电离截面较高,但同位素位 移几乎为零,难以获得高选择性[14];三步电离路径 可大幅提高选择性,是钕同位素分离的首选方案, 表 2 为早期研究建立的钕同位素三步电离路径,其 中路径一是 Nd-150 分离的现用路径, 其他路径的分 离效果尚未有文献报道. 值得注意的是, 路径一 $\lambda_1 =$ 596 nm 在 550-650 nm 波段内的钕原子第1步跃 迁中拥有最大的同位素位移, Nd-148 相对 Nd-150 的同位素位移达到 IS12 148 = 1126.9 MHz [15]; 而路径一 $\lambda_2 = 579$ nm 则几乎没有同位素位移,其 具体数值尚未有文献报道.

光电离路径的电离率和选择性一般通过激光

共振电离质谱 (resonance ionization mass spectrometry, RIMS) 实验获得, 这也是获取原子激发态 结构参数(如能级位置、角动量、能级寿命、同位素 位移、超精细结构)的可行方法[18-20],但先于实验 开展光电离理论计算,评估不同原子参数、激光参 数下的选择性光电离效果, 明确 Nd-150 丰度满足 要求时电离路径的同位素位移、超精细结构等参数 水平,对于后续原子光谱实验有着重要的指导意 义. Suryanarayana^[6] 在只考虑偶同位素, 并忽略 第2步跃迁同位素位移的前提下,粗略评估了表2 路径四的光电离效果,认为在100 MHz的激光线 宽条件下,能够以 600 mg/h 的产率生产丰度达到 66%的 Nd-150 同位素^[6], 但这对激光参数要求过 高, 难以实现大规模工程化应用. 近年来, 我们发 展了基于密度矩阵理论的选择性光电离模型,能够 计算不同同位素在多步电离过程中的电离率等参 数, 并开展了 Yb-176^[21], Lu-176^[22] 等多种同位素 的理论计算,理论结果与文献数据半定量一致.

本文在简述选择性光电离理论模型后,以路径 一为钕同位素电离路径的基准,通过理论模型获得 路径一的分支比等关键参数;在此基础上优化电离 路径,考虑到路径一 $\lambda_1 = 596$ nm 拥有最大的同位 素位移,因此第1步跃迁沿用 $\lambda_1 = 596 \text{ nm}, 假定$ 第3步跃迁电离截面与路径一相当,仅改变第2步 跃迁,通过改变第二激发态角动量、同位素位移、 超精细结构等参数构造假定电离路径,通过理论模 型开展所有钕同位素的电离率计算,评估相应的选 择性光电离效果能否满足应用要求,为后续原子光 谱实验提供方向性指导.

选择性光电离模型 2

考虑超精细结构和能级简并的三步电离路径 如图1所示,其中|1>,|2>,|3>分别为基态、第一 激发态、第二激发态, |1,i>, |2,j>, |3,k>分别为对 应的磁子能级, i, j, k分别表示对应的磁量子数, 磁子能级总数量分别为 I, J, K, |AIS> 为自电离态. 当核自旋 In 不为零时, 能级存在超精细分裂.





在三步电离路径下,原子共振吸收第1束激光 后由基态跃迁至第一激发态,再吸收第2束激光后 跃迁至第二激发态,继而吸收第3束激光跃迁至 自电离态,并快速弛豫产生离子.该过程可通过半经 典的密度矩阵理论描述.考虑超精细结构和能级简 并后,原子波函数可表示为各能级本征态的线性叠加:

$$\Psi(t, \mathbf{r}) = \sum_{i=1}^{I} a_1(t; i) \Phi_1(t, \mathbf{r}; i) + \sum_{j=1}^{J} a_2(t; j) \Phi_2(t, \mathbf{r}; j) + \sum_{k=1}^{K} a_3(t; k) \Phi_3(t, \mathbf{r}; k),$$
(1)

其中 $\Phi_1(i)$, $\Phi_2(j)$, $\Phi_3(k)$ 分别为 $|1,i\rangle$, $|2,j\rangle$, $|3,k\rangle$ 的本征波函数, $a_1(i)$, $a_2(j)$, $a_3(k)$ 分别为 $|1,i\rangle$, $|2,j\rangle$, $|3,k\rangle$ 的概率振幅.

在多束激光作用下,原子波函数的时间演化满 足 Schrödinger 方程,将激光场视为微扰,在电偶 极近似、旋转波近似、绝热近似等近似条件下,通 过定义失谐量 Δ 、Rabi 频率 Ω ,可以得到 (2) 式所 示的概率振幅时间演化方程组:

$$\begin{aligned} \frac{\mathrm{d}}{\mathrm{d}t}a_{1}\left(i\right) &= \frac{\mathrm{i}}{2}\sum_{j=1}^{J}\Omega_{12}\left(i,j\right)\mathrm{e}^{\mathrm{i}\Delta_{12}\left(i,j\right)t}a_{2}\left(j\right),\\ \frac{\mathrm{d}}{\mathrm{d}t}a_{2}\left(j\right) &= \frac{\mathrm{i}}{2}\sum_{i=1}^{I}\Omega_{12}^{*}\left(i,j\right)\mathrm{e}^{-\mathrm{i}\Delta_{12}\left(i,j\right)t}a_{1}\left(i\right)\\ &+ \frac{\mathrm{i}}{2}\sum_{k=1}^{K}\Omega_{23}\left(j,k\right)\mathrm{e}^{\mathrm{i}\Delta_{23}\left(j,k\right)t}a_{3}\left(k\right),\\ \frac{\mathrm{d}}{\mathrm{d}t}a_{3}\left(k\right) &= \frac{\mathrm{i}}{2}\sum_{j=1}^{J}\Omega_{23}^{*}\left(j,k\right)\mathrm{e}^{-\mathrm{i}\Delta_{23}\left(j,k\right)t}a_{2}\left(j\right). \end{aligned}$$

密度矩阵矩阵元定义为

$$\rho_{mn}\left(m',n'\right) = a_m\left(m'\right) \cdot a_n^*\left(n'\right)$$

其时间演化方程为

体系内部下能级的弛豫速率 *A*、上能级向体系外 部低能级的弛豫速率 *Γ*和第二激发态向自电离态 的跃迁速率 *R*,通过相扩散模型引入激光线宽 *b*, 可得到 (3) 式—(9) 式所示的密度矩阵方程组分量 形式:

$$\frac{\mathrm{d}}{\mathrm{d}t}\rho_{11}\left(i,i'\right) = \frac{\mathrm{i}}{2}\sum_{j=1}^{J}\Omega_{12}\left(i,j\right)\mathrm{e}^{\mathrm{i}\Delta_{12}\left(i,j\right)t}\rho_{21}\left(j,i'\right) - \frac{\mathrm{i}}{2}\sum_{j=1}^{J}\Omega_{12}^{*}\left(i',j\right)\mathrm{e}^{-\mathrm{i}\Delta_{12}\left(i',j\right)t}\rho_{12}\left(i,j\right) + \delta_{i,i'}\sum_{j=1}^{J}A_{21}\left(j,i\right)\rho_{22}\left(j,j\right),$$
(3)

$$\frac{\mathrm{d}}{\mathrm{d}t}\rho_{22}(j,j') = \frac{\mathrm{i}}{2}\sum_{k=1}^{K}\Omega_{23}(j,k)\,\mathrm{e}^{\mathrm{i}\Delta_{23}(j,k)t}\rho_{32}(k,j') - \frac{\mathrm{i}}{2}\sum_{k=1}^{K}\Omega_{23}^{*}(j',k)\,\mathrm{e}^{-\mathrm{i}\Delta_{23}(j',k)t}\rho_{23}(j,k) \\
+ \frac{\mathrm{i}}{2}\sum_{i=1}^{I}\Omega_{12}^{*}(i,j)\,\mathrm{e}^{-\mathrm{i}\Delta_{12}(i,j)t}\rho_{12}(i,j') - \frac{\mathrm{i}}{2}\sum_{i=1}^{I}\Omega_{12}(i,j')\,\mathrm{e}^{\mathrm{i}\Delta_{12}(i,j')t}\rho_{21}(j,i) \\
- \frac{1}{2}\left[\sum_{i=1}^{I}A_{21}(j,i) + \sum_{i=1}^{I}A_{21}(j',i) + \Gamma_{2}(j) + \Gamma_{2}(j')\right]\rho_{22}(j,j') \\
+ \delta_{j,j'}\sum_{k=1}^{K}A_{32}(k,j)\,\rho_{33}(k,k)\,,$$
(4)

$$\frac{\mathrm{d}}{\mathrm{d}t}\rho_{33}\left(k,k'\right) = \frac{\mathrm{i}}{2}\sum_{j=1}^{J}\Omega_{23}^{*}\left(j,k\right)\mathrm{e}^{-\mathrm{i}\Delta_{23}\left(j,k\right)t}\rho_{23}\left(j,k'\right) - \frac{\mathrm{i}}{2}\sum_{j=1}^{J}\Omega_{23}\left(j,k'\right)\mathrm{e}^{\mathrm{i}\Delta_{23}\left(j,k'\right)t}\rho_{32}\left(k,j\right)
- \frac{1}{2}\left[\sum_{j=1}^{J}A_{32}\left(k,j\right) + \sum_{j=1}^{J}A_{32}\left(k',j\right) + \Gamma_{3}\left(k\right) + \Gamma_{3}\left(k'\right) + R\left(k\right) + R\left(k'\right)\right]\rho_{33}\left(k,k'\right), \quad (5)$$

$$\frac{d}{dt}\rho_{\rm ion} = \sum_{k=1}^{K} R(k) \,\rho_{33}(k,k),\tag{6}$$

$$\frac{\mathrm{d}}{\mathrm{d}t}\rho_{12}\left(i,j\right) = \frac{\mathrm{i}}{2}\sum_{j'=1}^{J}\Omega_{12}\left(i,j'\right)\mathrm{e}^{\mathrm{i}\Delta_{12}\left(i,j'\right)t}\rho_{22}\left(j',j\right) - \frac{\mathrm{i}}{2}\sum_{i'=1}^{I}\Omega_{12}\left(i',j\right)\mathrm{e}^{\mathrm{i}\Delta_{12}\left(i',j\right)t}\rho_{11}\left(i,i'\right) \\
- \frac{\mathrm{i}}{2}\sum_{k'=1}^{K}\Omega_{23}^{*}\left(j,k'\right)\mathrm{e}^{-i\Delta_{23}\left(j,k'\right)t}\rho_{13}\left(i,k'\right) - \frac{1}{2}\left[\sum_{i=1}^{I}A_{21}\left(j,i\right) + \Gamma_{2}\left(j\right) + 2b_{12}\frac{\kappa_{12}^{2}b_{12}^{2}}{\Delta_{12}^{2} + \kappa_{12}^{2}b_{12}^{2}}\right]\rho_{12}\left(i,j\right), \quad (7)$$

$$\frac{\mathrm{d}}{\mathrm{d}t}\rho_{13}\left(i,k\right) = \frac{\mathrm{i}}{2}\sum_{j'=1}^{J}\Omega_{12}\left(i,j'\right)\mathrm{e}^{\mathrm{i}\Delta_{12}\left(i,j'\right)t}\rho_{23}\left(j',k\right) - \frac{\mathrm{i}}{2}\sum_{j'=1}^{J}\Omega_{23}\left(j',k\right)\mathrm{e}^{\mathrm{i}\Delta_{23}\left(j',k\right)t}\rho_{12}\left(i,j'\right) \\
- \frac{1}{2}\left[\sum_{j=1}^{J}A_{32}\left(k,j\right) + R\left(k\right) + \Gamma_{3}\left(k\right) + 2b_{12}\frac{\kappa_{12}^{2}b_{12}^{2}}{\Delta_{12}^{2} + \kappa_{12}^{2}b_{12}^{2}} + 2b_{23}\frac{\kappa_{23}^{2}b_{23}^{2}}{\Delta_{23}^{2} + \kappa_{23}^{2}b_{23}^{2}}\right]\rho_{13}\left(i,k\right), \quad (8)$$

$$\frac{\mathrm{d}}{\mathrm{d}t}\rho_{23}(j,k) = \frac{\mathrm{i}}{2}\sum_{k'=1}^{K}\Omega_{23}(j,k')\,\mathrm{e}^{\mathrm{i}\Delta_{23}(j,k')t}\rho_{33}(k',k) - \frac{\mathrm{i}}{2}\sum_{j'=1}^{J}\Omega_{23}(j',k)\,\mathrm{e}^{\mathrm{i}\Delta_{23}(j',k)t}\rho_{22}(j,j') \\
+ \frac{\mathrm{i}}{2}\sum_{i'=1}^{I}\Omega_{12}^{*}(i',j)\,\mathrm{e}^{-\mathrm{i}\Delta_{12}(i',j)t}\rho_{13}(i',k) - \frac{1}{2}\left(\sum_{i=1}^{I}A_{21}(j,i) + \sum_{j=1}^{J}A_{32}(k,j)\right) \\
+ \Gamma_{2}(j) + \Gamma_{3}(k) + R(k)\rho_{23}(j,k) - b_{23}\frac{\kappa_{23}^{2}b_{23}^{2}}{\Delta_{23}^{2} + \kappa_{23}^{2}b_{23}^{2}}\rho_{23}(j,k).$$
(9)

式中 i 为虚数单位, 上角标 "*"表示复共轭. 第 *m*步跃迁 $|m,m'\rangle \rightarrow |n,n'\rangle$ (*m* = 1, 2; *n* = *m*+1) 的失谐量为 $\Delta_{mn}(m', n') = f_{mn} - \nu_{mn}(m', n'), f_{mn}$ 为第 *m*束激光频率, ν_{mn} 为第 *m*步跃迁的共振位 置. 对于不存在超精细结构的同位素, 同一能级不 同磁子能级的角动量相同, 能级 $|m, m'\rangle$ 的 *J* 值仅 与 *m* 相关, 因此 ν_{mn} 与 *m'*, *n'*无关; 而对于存在超 精细结构的同位素, 能级分裂为若干超精细能级, 同一能级不同磁子能级的原子总角动量及其沿量 子化轴投影存在差异, 能级 $|m,m'\rangle$ 的 *F*值, *m_F*值 与 *m*, *m'*相关, 因此 ν_{mn} 与 *m'*, *n'*相关.

不同核自旋 *I*_n时,磁子能级跃迁通道的 Rabi 频率可统一表示

$$\Omega_{mn} (m', n') = C_{m,n,m',n'} \langle J_m | d_{mn} | J_n \rangle E_{mn} / \hbar, \qquad (10)$$

其中ħ为约化 Planck 常数; $E_{mn} = \sqrt{2P_{mn}/(c\varepsilon_0)}$ 为第 m 束激光的电场振幅, P_{mn} 为第 m 束激光功率, c 为真空中光速, ε_0 为真空介电常数; $\langle J_m | d_{mn} | J_n \rangle$ 为第 m 步跃迁的约化电偶极矩, 其计算公式为^[23]

$$\langle J_m | d_{mn} | J_n \rangle = \sqrt{3g_n \varepsilon_0 \hbar \lambda^3 A_{nm} / (8\pi^2)},$$
 (11)

式中, $g_n = 2J_n+1$ 为上能级的统计权重, λ 为跃迁 波长, $A_{nm} = \beta_{mn}/\tau_n$ 为 Einstein A 系数, β_{mn} 为跃 迁分支比, τ_n 为上能级寿命. 值得注意的是, 对于 同一跃迁, 不同同位素的约化电偶极矩相同^[24].

对于 $I_n \neq 0$ 同位素, 磁子能级跃迁通道的系数如 (12) 式所示^[25]:

$$C_{m,n,m',n'} = (-1)^{J_m + I_n + 2F_{m,m'} - m_{F,m,m'}} \\ \times \sqrt{(2F_{m,m'} + 1)(2F_{n,n'} + 1)} \\ \times \left\{ \begin{array}{c} J_m & F_{m,m'} & I_n \\ F_{n,n'} & J_n & 1 \end{array} \right\} \\ \times \left(\begin{array}{c} F_{m,m'} & 1 & F_{n,n'} \\ m_{F,m,m'} & q & -m_{F,n,n'} \end{array} \right), \qquad (12)$$

其中 {},()分别为 Wigner 6*j*, 3*j*符号, *q*表示激光 偏振性, 对于单步跃迁, q = -1, 0, 1分别表示左旋 圆偏振光、线偏振光、右旋圆偏振光激发. 对于 $I_n =$ 0 同位素, 上述系数可简化为

$$C_{m,n,m',n'} = (-1)^{3J_m - m_{J,m,m'}} \times \begin{pmatrix} J_m & 1 & J_n \\ m_{J,m,m'} & q & -m_{J,n,n'} \end{pmatrix}.$$
 (13)

因此上述模型能够在磁子能级级别计算原子与激 光的相互作用过程.

第二激发态向自电离态的跃迁速率 R 如 (14) 式所示:

$$R = \sigma_{\rm ion}\phi_{3\rm A},\tag{14}$$

其中 σ_{ion} 为电离截面, ϕ_{3A} 为第3束激光的光子数.

上述模型中, 基于相扩散模型^[26,27] 引入第 m 束 激光的线宽项 $2b_{mn} \frac{\kappa_{mn}^2 b_{mn}^2}{\Delta_{mn}^2 + \kappa_{mn}^2 b_{mn}^2}$, b_{mn} 为线宽 (半高全宽, FWHM), κ_{mn} 为截止系数. 引入的频 域线型为修正的洛伦兹线型, 近共振时 $|\Delta_{mn}| < \kappa_{mn}b_{mn}$, 频域线型为洛伦兹线型; 远失谐时 $|\Delta_{mn}| \gg \kappa_{mn}b_{mn}$, 频域线型近似于单色激光场. 通过改变 κ_{mn} 取值, 可以调整相扩散模型引入的激光频谱. 值得注意的是, 共振激发时 $\Delta_{mn} = 0$, κ_{mn} 的取值 不影响光与原子的相互作用过程.

在上述分量形式的基础上,构造广义向量 *ρ*,可得到如 (15)式所示的密矩阵度方程组矩阵形式:

$$\frac{\mathrm{d}}{\mathrm{d}t}\boldsymbol{\rho} = \boldsymbol{Q}\cdot\boldsymbol{\rho},$$

 $\rho = [\rho_{11}, \rho_{22}, \rho_{33}, \rho_{ion}, \rho_{12}, \rho_{13}, \rho_{23}]^{T},$ (15) 其中 Q 为系数矩阵, 广义向量 ρ 的分量分别有 $I^{2}, J^{2},$ $K^{2}, 1, IJ, IK, JK 项. 数值计算中, 假设初始时刻$ 原子均处于基态, 求解 (15) 式所示的常微分方程 $组即可得到原子与激光作用后的电离率 <math>\rho_{ion}.$

通过给定同位素位移、超精细结构等参数,上 述通用理论模型可适用于不同同位素.对于目标同 位素 n_t,其光电离后的丰度如 (16) 式所示:

$$C_{n_{\rm t}} = \frac{c_{0,n_{\rm t}}\rho_{\rm ion,n_{\rm t}}}{\sum_{n} c_{0,n}\rho_{\rm ion,n}},\tag{16}$$

其中 $c_{0,n}$, $\rho_{\text{ion},n}$ 分别为同位素 n 的天然丰度和电 离率.

3 计算结果

根据目前的文献报道, 仅有表 2 中的路径一实 现了工程化应用, 可选为钕同位素电离路径的基 准. 首先通过理论模型获得路径一的分支比等关键 参数, 在此基础上构造假定电离路径, 通过理论模 型评估相应的选择性光电离效果, 给出 Nd-150 丰 度满足应用要求时假定电离路径所需具备的参数 水平, 指导后续的原子光谱实验. 考虑到路径一 $\lambda_1 =$ 596 nm 拥有最大的同位素位移, 因此第 1 步跃迁 沿用 $\lambda_1 = 596$ nm, 假定第 3 步跃迁的电离截面与 路径一相当, 仅改变第 2 步跃迁, 通过改变第二激 发态角动量、超精细结构以及第 2 步跃迁同位素位 移等参数构造假定电离路径.

考虑到 Nd-150 为目标同位素,选取其前两步 跃迁共振位置为 $\nu_{12,150} = \nu_{23,150} = 0$,若无特殊说 明,其他钕同位素的共振位置均为该同位素相对 Nd-150 的共振位置.数值计算中激光参数取值如 表 3 所示,计算过程中未考虑 Doppler 效应、Stark

Table 3

效应等导致的原子共振频率移动,因此激光频率 $f_{12} = 0$ ($f_{23} = 0$)表示第1束(第2束)激光频率 与 Nd-150 共振;激光功率、线宽、偏振等其他参数 取值见文中说明.数值计算中采用4阶固定步长显 式 Runge-Kutta 算法,总模拟时长 90 ns,步长 0.01 ns.

3.1 路径一的性质

路径一的能级参数、跃迁参数分别如表 4 和 表 5 所示.其中钕同位素第 2 步跃迁的同位素位 移 IS₂₃ 以及奇同位素第二激发态的超精细常数 A_{23} , B_{23} 尚未有文献报道,假定可忽略不计;能级 寿命同样未有报道,由于第一激发态属于未知组态^[13], 参考附近同属未知组态的 16979.35 cm⁻¹ 能级^[13,28], 第一激发态能级寿命 τ_2 假定为典型值 600 ns^[28]; 第二激发态能级寿命 τ_3 过低 (如小于激光脉宽) 会 导致第 2 束激光功率吸收不完全以及吸收后的自 发辐射损失过多, τ_3 过高 (如接近 µs 量级)则会降 低第 2 步跃迁强度,不利于后续的第 3 步跃迁,因 此 τ_3 根据激光脉宽选取了典型值 100 ns;参考表 2 中路径三^[17],第 3 步跃迁的电离截面假定为相同 量级的 $\sigma_{ion} = 6 \times 10^{-16}$ cm².

分支比 β 是电离路径的重要参数, 在理论模型中可以通过保持上能级寿命、角动量和跃迁波 长不变、仅调整分支比的方式改变跃迁电偶极矩,

	1 0.510	51 Inc 100	er parameters adop	, , , , , , , , , , , , , , , , , , ,	encar carculation.			
	参数		第1束激光		第2束激光	第3束	激光	
	时域线型		高斯线型					
	脉宽		30 ns (FWHM)					
	时序关系			Це	锋值时刻同步			
	频域线型		ĺ	修正的洛伦兹线	型	_	-	
	截止系数			$\kappa_{12} = \kappa_{23} = 0.2$	2	_	-	
	频率		与Nd	-150共振, $f_{12} = 1$	_			
	平行线偏振			0:1:0 0:1:0		—		
偏振	混合偏打	辰	1/3:1/3:1/3 1/3:1/3:1/3		_	-		
	正交线偏	振	0:1:0 1/2:0:1/2					
		Table 4.	表 4 路径一的 The energy para	的能级参数 meters of schem	e No. 1.			
能级	$E/{ m cm}^{-1}$	J	A_{145}/MHz	A_{143}/A_{145}	B_{145}/MHz	B_{143}/B_{145}	τ/ns	
路径一E1	0 [13]	4[29]	$-121.628^{[29]}$	$1.60860^{[29]}$	64.634 ^[29]	$1.897^{[29]}$	œ	
路径一E2	16757.037 ^[13]	$5^{[15]}$	$-129.594^{[15]}$	$1.6099^{[15]}$	$90.6^{[15]}$	$1.91^{[15]}$	600^*	
路径一 E3	34011.04 [11]	$6^{[30]}$	0^*	0^*	0^*	0^{*}	100^{*}	

表 3 数值计算中的激光参数取值

注:"*"表示假定值.

表 5 路径一的同位素位移										
Table 5.The isotope shifts of scheme No. 1.										
跃迁	$\rm IS_{148}/MHz$	$\mathrm{IS}_{146}/\mathrm{IS}_{148}$	$\mathrm{IS}_{145}/\mathrm{IS}_{148}$	$\mathrm{IS}_{144}/\mathrm{IS}_{148}$	$\mathrm{IS}_{143}/\mathrm{IS}_{148}$	$\mathrm{IS}_{142}/\mathrm{IS}_{148}$				
路径一 λ_1	$1126.9^{[15]}$	$1.78^{[15]}$	$2.20^{[15]}$	$2.51^{[15]}$	$2.93^{[15]}$	$3.28^{[15]}$				
路径一 λ_2	0*	—	—	—	_	_				

注:"*"表示假定值.

从而改变饱和功率曲线的相对线型,通过与实验测 量的饱和功率曲线进行对比可确定分支比的取值. Grigoriev 等^[11] 基于共振电离质谱装置开展了不同 线宽下第2步饱和功率曲线测量.实验中,各束激 光与 Nd-150 共振, 第1 束激光线宽 $b_{12} = 0.1$ GHz, 第1,3 束激光功率密度分别为 $P_{12} = 2$ W/cm², $P_{3A} = 13 \text{ W/cm}^2$. 如图 2 所示, 第 2 束激光线宽为 窄线宽 $(b_{23} = 0.1 \text{ GHz})$ 时, 第 2 步饱和功率曲线 先上升后下降; 为宽线宽 (b₂₃ = 1.5 GHz) 时, 第 2步饱和功率曲线呈现出正常的先上升后逐渐饱 和的趋势. 值得注意的是, 实验中 $b_{23} = 0.1$ GHz 时出现了显著的 Stark 位移, 若第 2 束激光频率保 持不变 (如蓝色三角所示), 第2步饱和功率曲线在 高功率处 $(P_{23} = 8 \text{ W/cm}^2)$ 的信号强度约为最大 强度的 40%; 若功率增大过程中调整第 2 束激光 频率对 Stark 位移进行补偿 (如紫色星号所示), 上 述比例约为 70%. 推测是第 2 步饱和功率曲线实 验值同时受单步跃迁和近共振 2λ 双光子跃迁等两 方面影响,由于能级位置的 Stark 位移与激光功 率正相关,前者的跃迁概率随激光功率增大而减 小;后者则随激光功率增大而增大.考虑到基态钕 原子吸收 2λ₂ 光子的激发位置 34508.006 cm⁻¹ 与 34509.603 cm⁻¹(J = 4) 能级^[30] 接近, 且角动量满 足双光子跃迁选择定则, 推测钕原子可能存在较强





Fig. 2. The experimental saturated power density curve of the second transition^[11].

的近共振 2λ₂ 双光子跃迁,从而能够在一定程度上 抑制 Nd-150 电离率的降低,甚至在更高功率下能 够提升电离率.

在激光频率与 Nd-150 共振 $f_{12} = f_{23} = 0$ 、平 行线偏振以及上述线宽、功率条件下,调整前两步 跃迁分支比组合,对第 2 步饱和功率曲线进行理论 计算.不同线宽下的第 2 步饱和功率曲线计算值分 別如图 3 和图 4 所示,每张子图代表某一第 1 步跃 迁分支比 β_{12} 和一组第 2 步跃迁分支比 β_{23} 下的 第 2 步饱和功率曲线.如图 3 所示, $b_{23} = 0.1$ GHz 时,随着第 2 束激光功率增大,理论曲线先上升后 下降,高功率区间的电离率下降程度与分支比组合 相关.如图 4 所示, $b_{23} = 1.5$ GHz 时,除 $\beta_{12} = 0.05$, $\beta_{23} = 0.4, 0.5, 0.6$ 等少数曲线在高功率区间呈现 明显的下降趋势外,其他曲线均为正常的饱和功率 曲线线型,高功率区间的电离率基本保持不变或者 下降程度可忽略.可见,前两步饱和功率曲线的计 算值与实验值在定性上一致.

由于 Nd-150 电离率理论计算时激光失谐量 为 $\Delta_{12} = \Delta_{23} = 0$,因此激光频率始终与 Nd-150 共振, Nd-150 电离率理论结果应与 f_{23} 补偿 Stark 位移的实验结果对比.为确定最优的跃迁分支比组 合,根据理论曲线在 $b_{23} = 0.1$ GHz, $P_{23} = 8$ W/cm² 的归一化电离率 $\rho_{ion,150}$ 定性判断理论曲线与实验 值的符合程度.第2步饱和功率曲线的归一化计算 值与实验值如图 5 所示,其中图 5(a), (b) 分别为 窄线宽、宽线宽激发时的饱和功率曲线,图 5(c) 为 图 5(b) 纵轴 [0.9, 1] 的局部放大图,紫色星号为窄 线宽时补偿 Stark 位移后的实验值,紫色圆圈为宽 线宽时的实验值,曲线为计算值,曲线的线型 (实 线、虚线、点线) 表示 β_{12} ,曲线的颜色表示 β_{23} .

根据图 5(a),前两步跃迁分支比组合为 $\beta_{12} =$ 0.15, $\beta_{23} = 0.5$ 时, $P_{23} = 8$ W/cm² 的归一化 $\rho_{\text{ion},150}$ 计算值与实验值最为接近,因此选取上述参数为路 径一的最优分支比组合,对应的约化电偶极矩分别 为 4.5535×10⁻³⁰ C·m, 2.1188×10⁻²⁹ C·m. 总体而 言,如图 5 橙色实线所示的第 2 步饱和功率曲线计



图 3 $b_{23} = 0.1$ GHz 时,不同 β_{12} , β_{23} 下的第 2 步饱和功率曲线计算值 (a) $\beta_{12} = 0.05$; (b) $\beta_{12} = 0.1$; (c) $\beta_{12} = 0.15$; (d) $\beta_{12} = 0.2$ Fig. 3. The numerical saturated power density curve of the second transition under $b_{23} = 0.1$ GHz and different combinations of β_{12} , β_{23} : (a) $\beta_{12} = 0.05$; (b) $\beta_{12} = 0.1$; (c) $\beta_{12} = 0.15$; (d) $\beta_{12} = 0.2$.



图 4 $b_{23} = 1.5$ GHz 时,不同 β_{12} , β_{23} 下的第 2 步饱和功率曲线计算值 (a) $\beta_{12} = 0.05$; (b) $\beta_{12} = 0.1$; (c) $\beta_{12} = 0.15$; (d) $\beta_{12} = 0.2$ Fig. 4. The numerical saturated power density curve of the second transition under $b_{23} = 1.5$ GHz and different combinations of β_{12} , β_{23} : (a) $\beta_{12} = 0.05$; (b) $\beta_{12} = 0.1$; (c) $\beta_{12} = 0.15$; (d) $\beta_{12} = 0.2$.



图 5 第 2 步饱和功率曲线的归一化 Nd-150 电离率计算 值与实验值对比 (a) b₂₃ = 0.1 GHz; (b) b₂₃ = 1.5 GHz; (c) b₂₃ = 1.5 GHz, 纵轴 [0.9, 1] 的局部放大图

Fig. 5. The numerical and experimental saturated power density curve of the second transition (shown as normalized ionization probability of Nd-150): (a) $b_{23} = 0.1$ GHz; (b) $b_{23} = 1.5$ GHz; (c) $b_{23} = 1.5$ GHz, the partial enlarged view of the vertical axis in the range of [0.9, 1]. 算值与实验值的定性趋势一致.图 5 中理论曲线与 实验结果存在一定差异:1)理论曲线在更低功率 处 ($P_{23} = 0.5$ W/cm²)达到电离率最大值或者饱 和值,可能的原因是实验所用激光频谱的线型及纵 模分布与理论模型所采用的相扩散模型存在差异^[31]. 2)理论曲线在高功率区间 ($P_{23} = 5$ —10 W/cm²) 的下降趋势更加显著,而实验值则快速趋于平缓, 推测是实验中钕原子近共振 2 λ_2 双光子跃迁补偿 了 Stark 位移导致的电离率下降,而本文模型仅考 虑 λ_1 或 λ_2 单步跃迁、近共振 $\lambda_1+\lambda_2$ 双光子跃迁等 两种情况,未考虑近共振 2 λ 双光子跃迁等其他非 线性效应.

确定路径一的分支比后,在饱和激发 ($P_{12} = P_{23} = 2 \text{ W/cm}^2$)的条件下,评估路径一的选择性 光电离效果,包括 Nd-150 电离率和 Nd-150 丰度. 计算过程中考虑所有钕同位素,并忽略了奇同位素 第二激发态的超精细分裂.计算结果如表 6 所示, 可见在典型激光线宽下,路径一的 Nd-150 丰度难 以超过 70%,不能满足核工业、科学研究等领域对 于富集 Nd-150 同位素的需求.

3.2 假定电离路径的性质

如上所述,路径一仅有第1步跃迁 $\lambda_1 = 596$ nm 具备可观的同位素位移,第2步跃迁 $\lambda_2 = 579$ nm 则几乎没有同位素位移,使得分离后的 Nd-150 丰 度不能满足应用需求,需要开展原子光谱实验寻找 新电离路径以提高选择性.考虑到原子光谱实验周 期较长,因此基于理论模型在假定路径参数的条件 下开展电离率的数值计算,评估假定电离路径的选 择性光电离效果,根据 Nd-150 丰度判断假定电离 路径所需具备的参数水平,这对于实验扫描有着重 要指导意义.

考虑到钕原子第一激发态研究较为充分,第二 激发态及自电离态数据缺失严重,且路径一 λ_1 = 596 nm 拥有最大的同位素位移,因此电离路径的 优化方案确定为:第1步跃迁沿用 λ_1 = 596 nm, 在此基础上扫描第二激发态及自电离态,寻找高效

Table 6.	The se	elective photoion	nization effects o	f scheme No. 1.	

线宽/GHz	1.0, 1.0	0.5, 1.0	0.3, 1.0	1.0, 0.5	1.0, 0.3	0.5,0.5	0.3, 0.3
$C_{150}/\%$	49.86	54.81	55.80	54.64	58.86	68.35	61.00
$ ho_{ m ion,150}$	0.3839	0.4071	0.4158	0.3848	0.3849	0.4144	0.4073

Table 7. The energy parameters of the imagined photoionization scheme of Nd isotope.									
能级	$E/{ m cm}^{-1}$	J	A_{145}/MHz	A_{143}/A_{145}	B_{145}/MHz	B_{143}/B_{145}	τ/ns		
路径一 E1	0 [13]	$4^{[29]}$	$-121.628^{[29]}$	$1.60860^{[29]}$	$64.634^{[29]}$	$1.897^{[29]}$	8		
路径一 E2	16757.037 ^[13]	$5^{[15]}$	$-129.594^{\left[15 ight]}$	$1.6099^{[15]}$	$90.6^{[15]}$	$1.91^{[15]}$	600^*		
假定E3	34011.04^*	可选†	可调‡	1.6^{*}	0^{*}	1.9^{*}	100^*		
<u>决</u> //***==→□□→□□		の世田山ゴル	$(\pm n \pm \pm \pm \epsilon)$				4 15 46 世 11 1		

表 7 钕同位素假定电离路径的能级参数

注: "*"表示假定值, "[†]"表示在4, 5, 6范围内可选, "[‡]"表示在(-∞, 0] MHz范围内可调, 根据低能级超精细常数数值, 本文选取的范围为 [-140, 0] MHz.

表 8 钕同位素假定电离路径的跃迁参数

Table 8.	The transition p	parameters of t	he imagined	photoionization	scheme of Nd isotope.

跃迁	$\rm IS_{148}/\rm MHz$	$\mathrm{IS}_{146}/\mathrm{IS}_{148}$	$\mathrm{IS}_{145}/\mathrm{IS}_{148}$	$\mathrm{IS}_{144}/\mathrm{IS}_{148}$	$\mathrm{IS}_{143}/\mathrm{IS}_{148}$	$\mathrm{IS}_{142}/\mathrm{IS}_{148}$	β	$\langle J_m d_{mn} J_n angle / (imes 10^{-30} \ { m C} {\cdot}{ m m})$
路径一 λ_1	$1126.9^{[15]}$	$1.78^{[15]}$	$2.20^{[15]}$	$2.51^{[15]}$	$2.93^{[15]}$	$3.28^{[15]}$	0.15^{\dagger}	4.5535
假定 λ_2	可调‡	1.66^{*}	2^*	2.32^*	2.66^{*}	3^*	0.05^{*}	6.7004

注: "*"表示假定值,"⁴"表示由理论模型得到的拟合值,"⁴"表示在(-∞,∞) GHz范围内可调,根据第1步跃迁同位素位移数值,本文选取的范围为[-1.5, 1.5] GHz.

高选择性的光电离路径.相应的数值计算中,不改 变第1步跃迁,且假定第3步跃迁的电离截面与路 径一相当, 仅改变第2步跃迁, 通过改变第二激发 态角动量、超精细结构以及第2步跃迁同位素位移 等参数构造假定电离路径. 计算时选取的能级参 数、跃迁参数分别如表7和表8所示,计算参数在 多方面进行合理假设:1) 第二激发态能级位置、寿 命假定不变,通过调整角动量、分支比改变第2步 跃迁的约化电偶极矩,并调整第2步跃迁同位素位 移、第二激发态的超精细结构,以构造不同跃迁强 度、跃迁共振位置的假定电离路径; 2) 考虑到 IS23 一般小于 IS12, 第2步跃迁的同位素位移比值 假定在第1步跃迁的基础上有所降低,因此选择性 光电离效果评估相对偏保守: 3) 考虑到同一跃迁 难以兼具大同位素位移、大约化电偶极矩的性质, 为寻找高选择性电离路径需要增大 IS23, 因此将分 支比 β_{23} 在路径一的基础上降低1个量级,对应的 约化电偶极矩 (J2 | d23 | J3) 大约相当于路径一的 30%.

3.2.1 偏振、第二激发态角动量对饱和功 率曲线的影响

如 (11) 式所示, 跃迁的约化电偶极矩与上能 级角动量直接相关; 如 (12) 式和 (13) 式所示, 磁 子能级间跃迁通道的电偶极矩通过 Wigner 3*j*符 号与激光偏振直接相关.因此应首先优选偏振、第 二激发态角动量 *J*₃取值, 针对最优参数值开展后 续的选择性光电离效果理论评估.

在典型线宽 $b_{12} = b_{23} = 0.5$ GHz, 频率与 Nd-150 共振的条件下, 开展假定电离路径的饱和功率

曲线计算,给出电离率最高的偏振、J₃的参数组合. 第1步和第2步饱和功率曲线分别如图6和图7 所示, 激光参数: $f_{12} = f_{23} = 0$, $P_{3A} = 13$ W/cm², $b_{12} = 0.5$ GHz, $b_{23} = 0.5$ GHz, 偏振见图例, 图 6 为 P_{12} 扫描, $P_{23} = 2$ W/cm², 图 7 为 $P_{12} = 2$ W/cm², P23 扫描.其中曲线线型 (实线、虚线、点线) 表示 如表3所示的激光偏振,由于工程中难以实现高纯 圆偏振光的高功率输出,本节计算中仅考虑了线偏 振和混合偏振等典型值;曲线颜色表示 J3 取值. 可 见,现象一:图6和图7相同颜色的不同线型曲线 中,实线最快达到饱和,即相同 J3 取值时,平行线 偏振的饱和功率最低. 这是由于磁子能级相干布居 囚禁效应,该效应能够降低磁子能级跃迁通道的电 离率, 而平行线偏振能够解除 (对应 $I_n = 0, J_1 =$ $0 \rightarrow J_2 = 1 \rightarrow J_3 = 2 \ \ U \ \ B \ I_n = 0, \ J_1 = 2 \rightarrow J_2 =$ $1 \rightarrow J_3 = 0$ 等两种电离路径) 或抑制 (对应除前两 者之外的其他电离路径)该效应,相比其他激光偏 振更能够有效激发下能级原子. 现象二: 图 6 相同 颜色的不同线型曲线中, 橙色曲线中点线在高功率 区间 ($P_{12} > 5 \text{ W/cm}^2$) 的电离率最高, 黄色、蓝色 曲线中实线的电离率最高,即对于高功率区间的 第1步饱和功率曲线, $J_3 = 5$ 时正交线偏振的电离 率最高, $J_3 = 4, 6$ 时平行线偏振的电离率最高. 现 象三:图6和图7所有工况中,蓝色实线的饱和电 离率最高,即平行线偏振、J3 = 6 为 Nd-150 电离 率最高时的参数取值. 值得注意的是, 上述参数取 值下,即使 $\beta_{23} = 0.05$ 相比路径一降低了 1 个量 级, $P_{12} = P_{23} = 2 \text{ W/cm}^2$ 仍能够实现 Nd-150 的 饱和电离.



图 6 偏振、J₃对第1步饱和功率曲线的影响

Fig. 6. The influences of laser polarization and the angular momentum of the second excited state J_3 on the saturated power density curve of the first transition.





Fig. 7. The influences of laser polarization and the angular momentum of the second excited state J_3 on the saturated power density curve of the second transition.



图 8 偏振对超精细跃迁通道相对跃迁强度的影响 (a) $J_1 = 4 \rightarrow J_2 = 5$; (b) $J_2 = 5 \rightarrow J_3 = 4$; (c) $J_2 = 5 \rightarrow J_3 = 5$; (d) $J_2 = 5 \rightarrow J_3 = 6$

Fig. 8. The influences of laser polarization on the relative strengths of the hyperfine transition paths: (a) $J_1 = 4 \rightarrow J_2 = 5$; (b) $J_2 = 5 \rightarrow J_3 = 4$; (c) $J_2 = 5 \rightarrow J_3 = 5$; (d) $J_2 = 5 \rightarrow J_3 = 6$.

上述现象二可通过图 8 定性解释,其中图 8(a) 为第 1 步跃迁 $J_1 = 4 \rightarrow J_2 = 5$ 的磁子能级跃迁 通道相对跃迁强度,图 8(b)—(d)分别为第 2 步跃 迁 $J_2 = 5 \rightarrow J_3 = 4, 5, 6$ 的相对跃迁强度,子图中 蓝色圆圈、橙色叉号、黄色加号分别表示 q = +1, 0, -1的相对跃迁强度.可见, $\Delta J = 0$ 跃迁的超精 细跃迁通道相对跃迁强度随下能级磁量子数增大 的定性规律与 $\Delta J = \pm 1$ 跃迁存在显著差异, $\Delta J = 0$ 时的 q = 0相对跃迁强度关于 $m_J = 0$ 呈对称发散 状, $q = \pm 1$ 相对跃迁强度关于 $m_J = 0$ 呈对称弧状; 而 $\Delta J = \pm 1$ 时的 q = 0超精细跃迁通道则关于 $m_J = 0$ 呈对称弧状, $q = \pm 1$ 超精细跃迁通道则随 着 m_J 值线性变化. 特别地,由于跃迁定则, $J_2 = 5$ → $J_3 = 5$ 的 $m_{D} = 0 \rightarrow m_{B} = 0$ 为禁戒跃迁. 对 于第 1 步跃迁,在线偏振激发下,第一激发态原子 主要布居在低磁量子数磁子能级 ($|m_{D}| \le 2$). 在 平行线偏振下,第 2 步跃迁发生 q = 0跃迁, $J_3 =$ 6 时 $|m_{D}| \le 2$ 磁子能级的相对跃迁强度与 $J_3 =$ 4 相当,且显著高于 $J_3 = 5$,因此 $J_3 = 6$ 的饱和电 离率更高;在正交线偏振下,第 2 步跃迁发生 q =±1 跃迁, $J_3 = 5$ 时 $|m_{D}| \le 2$ 磁子能级的相对跃迁 强度高于 $J_3 = 4$, 6,因此 $J_3 = 5$ 的饱和电离率更高.

3.2.2 假定电离路径的选择性光电离效果

基于以上讨论,综合考虑工程实现难度与电离效果,选取平行线偏振、 $J_3 = 6$ 开展假定电离路径在不同同位素位移、超精细结构下的选择性光电离效果评估. 文献 [6] 中忽略了钕奇同位素对 Nd-150 选择性光电离的影响,而本文将所有钕同位素

均考虑在内. 评估过程中, 给定 Nd-148 相对 Nd-150 的第 2 步跃迁同位素位移 IS_{23,148}, 按照表 8 所示的比例给出其他钕同位素相对 Nd-150 的同位素 位移, 从而改变所有钕同位素的 IS₂₃; 以及给定 Nd-145 第二激发态的超精细常数 A_{3,145}, B_{3,145}, 按照 表 7 所示的比例给出 Nd-143 的超精细常数 A_{3,143}, B_{3,143}, 从而改变钕奇同位素的超精细分裂. 钕奇同 位素超精细结构的共振位置由超精细常数、重心相 对 Nd-150 的同位素位移共同决定.

在开展不同参数取值时各同位素电离率计算前,首先评估超精细常数对钕奇同位素共振位置的影响.第二激发态超精细常数 $A_{3,145}$ 对钕奇同位 素第 2 步跃迁超精细结构的影响如图 9 所示,以 $B_{3,145} = 0$ MHz, IS_{23,148} = 0 GHz 为示例.其中 图 9(a), (b) 为 Nd-145 的超精细结构共振位置, 图 9(c), (d) 为 Nd-143 的超精细结构共振位置,图 9 子图的横轴 ν_{23} 为超精细跃迁通道的共振位置,



图 9 第二激发态超精细常数 *A*_{3,145} 对钕奇同位素第 2 步跃迁超精细结构的影响, 以 *B*_{3,145} = 0 MHz, IS_{23,148} = 0 GHz 为示例 (a) Nd-145, *A*_{3,145} = 0 MHz, -20 MHz, -40 MHz, -60 MHz; (b) Nd-145, *A*_{3,145} = -80 MHz, -100 MHz, -120 MHz, -140 MHz; (c) Nd-143, *A*_{3,143} = 1.6*A*_{3,145}, *A*_{3,145} = 0 MHz, -20 MHz, -40 MHz, -60 MHz; (d) Nd-143, *A*_{3,143} = 1.6*A*_{3,145}, *A*_{3,145} = -80 MHz, -100 MHz, -100 MHz, -120 MHz, -140 MHz

Fig. 9. The influences of the second excited state's hyperfine constant $A_{3,145}$ on the hyperfine structure of the second transition of Nd odd isotopes, taking $B_{3,145} = 0$ MHz, $IS_{23,148} = 0$ GHz as an example: (a) Nd-145, $A_{3,145} = 0$ MHz, -20 MHz, -40 MHz, -60 MHz; (b) Nd-145, $A_{3,145} = -80$ MHz, -100 MHz, -120 MHz, -140 MHz; (c) Nd-143, $A_{3,143} = 1.6A_{3,145}$, $A_{3,145} = 0$ MHz, -20 MHz, -20 MHz, -40 MHz, -20 MHz, -40 MHz, -100 MHz,

纵轴为其相对跃迁强度,针状线的颜色表示不同 $A_{3,145}$ 取值时的超精细结构,跃迁强度最高的 $F_2 =$ $8.5 \rightarrow F_3 = 9.5$ 和跃迁强度最低的 $F_2 = 8.5 \rightarrow F_3 =$ 7.5已用矩形框出.可见,在 $A_{3,145} = 0$ —140 MHz 范围内,随着 $A_{3,145}$ 逐渐偏离0 MHz, $F_2 = 8.5 \rightarrow$ $F_3 = 9.5$ 的共振位置由谱线的高频侧 (如 $A_{3,145} =$ 0 所示)逐渐移向中心 (如 $A_{3,145} = -80$ MHz, -100 MHz 所示),再逐渐移向低频侧 (如 $A_{3,145} =$ -140 MHz 所示),而 $F_2 = 8.5 \rightarrow F_3 = 7.5$ 则均出 现在谱线的高频侧.由于 Nd-143 与 Nd-145 核自 旋均为 7/2, Nd-143超精细结构与 Nd-145 定性→ 致,区别在于前者的分裂程度更大,以及同位素位 移所导致的超精细结构重心存在差异.

第二激发态超精细常数 B_{3,145} 对钕奇同位素 第 2 步跃迁谱线分裂程度、共振位置的影响分别如 表 9 和表 10 所示,其中 $\nu_{23, A, B}$ 为超精细常数分别 取值为 A, B 时的第 2 步跃迁超精细跃迁通道共振 位置, max($\nu_{23, A, B}$),min($\nu_{23, A, B}$)分别为共振位置 的最大值、最小值, 二者的差值为谱线分裂程度, max($|\nu_{23, A, B} - \nu_{23, A, 0}|$)为考虑 B常数与不考虑 B 常数时的共振位置最大差异值.可见, 第2步跃迁 的谱线分裂程度在 $A_{3,145} = 0$ 时最大, 随着 $A_{3,145}$ 逐渐偏离 0 MHz 分裂程度逐渐降低, 在 $A_{3,145} =$ -120 MHz 时达到最小值, 后稍有增大. 综合图 9、 表 9、表 10, 钕奇同位素超精细结构主要由 A 常数 决定, 其相对 Nd-150 的位置同时受 IS_{23,148} 取值的 影响; B常数对钕奇同位素共振位置的影响至多为 数十 MHz 量级, 而谱线分裂程度在数 GHz 量级. 因此 B常数对后续激发、电离的影响可忽略, 计算 钕奇同位素电离率时仅考虑 A 常数导致的超精细 分裂.

在忽略 B常数对超精细结构影响的前提下, 选取假定电离路径的 Nd-148 第 2 步跃迁同位素位 移 IS_{23,148}, Nd-145 第二激发态超精细常数 A_{3,145} 典型值,基于典型值调整所有同位素的同位素位 移和奇同位素的超精细结构,开展所有钕同位素

表 9 第二激发态超精细常数 $B_{3,145}$ 对钕奇同位素第 2 步跃迁谱线分裂程度的影响 Table 9. The influences of the second excited state's hyperfine constant $B_{3,145}$ on the hyperfine splitting degree of the second transition of Nd odd isotopes.

	_	Nd-145超精细常数取值A'/MHz									
同位素	超精细常数	0	-20	-40	-60	-80	-100	-120	-140		
		谱线分裂程度max($\nu_{23, A, B}$) – min($\nu_{23, A, B}$)/GHz									
Nd-145	$B=-0.3A,A=A^{\prime}$	5.006	4.456	3.906	3.356	2.806	2.268	2.160	2.520		
	$B=-0.5A,A=A^{\prime}$	5.006	4.452	3.898	3.345	2.791	2.254	2.143	2.500		
	$B=-0.7A,A=A^{\prime}$	5.006	4.450	3.893	3.337	2.781	2.245	2.131	2.487		
	$B=-1.0A,A=A^{\prime}$	5.006	4.447	3.888	3.330	2.771	2.236	2.120	2.473		
	B = -0.3A, A = 1.6A'	8.064	7.184	6.304	5.424	4.544	3.676	3.456	4.032		
Nd 149	B = -0.5A, A = 1.6A'	8.064	7.178	6.292	5.406	4.520	3.654	3.429	4.000		
Nd-143	B = -0.7A, A = 1.6A'	8.064	7.174	6.284	5.394	4.504	3.639	3.410	3.979		
	B = -1.0A, A = 1.6A'	8.064	7.170	6.276	5.382	4.488	3.625	3.392	3.957		

表 10 第二激发态超精细常数 B_{3.145} 对钕奇同位素第 2 步跃迁超精细跃迁通道共振位置的影响

Table 10. The influences of the second excited state's hyperfine constant $B_{3,145}$ on the resonance frequencies of hyperfine transition paths of Nd odd isotopes' the second transition.

		Nd-145超精细常数取值A'/MHz									
同位素	超精细常数	0	-20	-40	-60	-80	-100	-120	-140		
	_	共振位置最大差异值max(_{\nu_{23, A, B} - \nu_{23, A, 0})/MHz									
Nd-145	$B=-0.3A,A=A^{\prime}$	0	2.4	4.8	7.2	9.6	11.9	14.3	16.7		
	$B=-0.5A,A=A^{\prime}$	0	4.0	8.0	11.9	15.9	19.9	23.9	27.8		
	$B=-0.7A,A=A^{\prime}$	0	5.6	11.1	16.7	22.3	27.8	33.4	39.0		
	$B=-1.0A,A=A^{\prime}$	0	8.0	15.9	23.9	31.8	39.2	47.7	55.7		
	B = -0.3A, A = 1.6A'	0	3.8	7.6	11.5	15.3	19.1	22.9	26.7		
NJ 142	B = -0.5A, A = 1.6A'	0	6.4	12.7	19.1	25.5	31.8	38.2	44.6		
Nd-143	B = -0.7A, A = 1.6A'	0	8.9	17.8	26.7	35.6	44.6	53.5	62.4		
	B = -1.0A, A = 1.6A'	0	12.7	25.5	38.2	50.9	63.6	76.4	89.1		

电离率的计算,评估相应的 Nd-150 选择性光电离 效果. 如图 10 所示,激光参数: $f_{12} = f_{23} = 0$, $P_{12} = 2$ W/cm², $P_{23} = 2$ W/cm², $P_{3A} = 13$ W/cm², 其 中每张子图表示特定 IS_{23,148} 取值下,不同超精细 结构、激光线宽时的选择性光电离效果,横轴为 Nd-150 电离率,纵轴为 Nd-150 丰度,位于子图右 上部分的选择性光电离效果较好;奇同位素超精细 结构由标记的颜色表示,且与图 9 中针状线的颜色 对应,激光线宽由标记的样式 (圆圈、菱形、三角、叉号、方形、星号、加号)表示.可见,在本文的假定 电离路径下,同位素位移、超精细结构对 Nd-150 选择性光电离影响的基本规律如下: 1) 正向 IS₂₃ (IS₂₃ = $\nu_{23} - \nu_{23,150}$,即其他钕同位素第 2 步跃迁 共振位置与 Nd-150 的差值)的光电离效果优于负

向 IS_{23} ; 2) 钕奇同位素超精细结构对光电离效果的 影响在负向 IS_{23} 时更为显著,在正向 IS_{23} 时不同 超精细结构的影响没有明显差异; 3) 压窄线宽能 够提高 Nd-150 电离率和丰度,负向 IS_{23} 时压窄线 宽对丰度的提升效果更为显著.这是由于 $IS_{12} > 0$, 正向 $IS_{23} 与 IS_{12}$ 相互叠加,在 $f_{12} = f_{23} = 0$ 激发下, 其他钕同位素的谱线相比 $IS_{23} = 0$ 时更加偏离 Nd-150 共振位置,从而抑制非目标同位素的激发 电离,提高 Nd-150 选择性;而负向 IS_{23} 会与 IS_{12} 相互抵消,在 $f_{12} = f_{23} = 0$ 激发下,奇同位素的一 些超精细跃迁通道或者偶同位素的跃迁通道与 Nd-150 共振位置更为接近,继而以近共振 $\lambda_1 + \lambda_2$ 双光子电离的方式产生杂质离子,降低 Nd-150 选择性.



图 10 不同第 2 步跃迁同位素位移、第二激发态超精细结构下的钕同位素选择性光电离效果 (a) $IS_{23,148} = -1500 MHz$; (b) $IS_{23,148} = -1000 MHz$; (c) $IS_{23,148} = -500 MHz$; (d) $IS_{23,148} = -300 MHz$; (e) $IS_{23,148} = 0.0 MHz$; (f) $IS_{23,148} = 300 MHz$; (g) $IS_{23,148} = 500 MHz$; (h) $IS_{23,148} = 1000 MHz$; (i) $IS_{23,148} = 1500 MHz$

Fig. 10. The selective photoionization effects of Nd isotopes under different combinations of the second transition's isotope shifts and the second excited state's hyperfine structures: (a) $IS_{23,148} = -1500 \text{ MHz}$; (b) $IS_{23,148} = -1000 \text{ MHz}$; (c) $IS_{23,148} = -500 \text{ MHz}$; (d) $IS_{23,148} = -300 \text{ MHz}$; (e) $IS_{23,148} = 0.0 \text{ MHz}$; (f) $IS_{23,148} = 300 \text{ MHz}$; (g) $IS_{23,148} = 500 \text{ MHz}$; (h) $IS_{23,148} = 1000 \text{ MHz}$; (i) $IS_{23,148} = 1500 \text{ MHz}$.

如图 10(b) 中青色标记所示, $f_{12} = f_{23} = 0$, $IS_{23,148} = -1000 \text{ MHz}, A_{3,145} = -100 \text{ MHz}$ 时 Nd-150 丰度最低. 下面以该组工况为例, 分析第2步 跃迁同位素位移、第二激发态超精细结构对钕同位 素选择性光电离过程的影响, 阐述近共振 $\lambda_1 + \lambda_2$ 双光子跃迁对钕同位素激发电离所产生的影响. 该 组工况中,光电离后的各同位素丰度如表 11 所示, 可见主要杂质同位素为 Nd-148, Nd-143, Nd-145. 敏偶同位素的共振位置如表 12 所示, 其中 ν_{12}, ν_{23} , $\nu_{12}+\nu_{23}$ 分别为 $J_1 \rightarrow J_2$ 第1步跃迁、 $J_2 \rightarrow J_3$ 第 2步跃迁、 $J_1 \rightarrow (J_2) \rightarrow J_3 \lambda_1 + \lambda_2$ 双光子跃迁的共 振峰位.可见,激光频率与 Nd-150 共振时, Nd-148 虽然由于 $J_1 \rightarrow J_2 \rightarrow J_3$ 双步跃迁的失谐量较 大而跃迁概率偏低,但仍可通过近共振 $\lambda_1 + \lambda_2$ 双 光子跃迁的方式电离;其他钕偶同位素相对 Nd-150的同位素位移更大,双步跃迁、双光子跃迁的 概率均低于 Nd-148, 且随着双光子跃迁失谐量的 增大,电离后的同位素丰度显著降低.

な奇同位素丰度高的原因可通过图 11 定性解 释,其中图 11(a), (b) 横轴 $ν_{12}(ν_{23})$ 分别为 Nd-145 第 1 步 (第 2 步) 超精细跃迁通道共振位置,第 一激发态 F 值由针状线的颜色表示,相同颜色的 针状线表示两步超精细跃迁通道 $F_1 → F_2 → F_3$, 跃迁类型 ΔF 由针状线线型 (实线圆圈、虚线三 角、点线五星)表示;相应见图 11(d), (e) 的 Nd-143 超精细跃迁通道;在图 11(c) 中,蓝色实线为 Nd-145 第 2 步谱线, 计算条件为 $f_{12} = 0$, $b_{12} = b_{23} = 0.5$ GHz, 对应横轴 f_{23} 为第 2 束激光频率, 左纵轴 为电离率, 橙色针状线为 Nd-145 $\lambda_1 + \lambda_2$ 双光子跃 迁 $F_1 \rightarrow (F_2) \rightarrow F_3$, 对应横轴 $\nu_{12} + \nu_{23}$ 为 $\lambda_1 + \lambda_2$ 双光子跃迁的共振位置, 右纵轴为双光子跃迁的相 对强度, 当 $f_{12} + f_{23}$ 位于共振位置附近时即可发生 近共振 $\lambda_1 + \lambda_2$ 双光子跃迁, $f_{12} = f_{23} = 0$ 时的电离 率如品红色菱形所示; 相应图 11(f) 为 Nd-143 的 第 2 步谱线和 $\lambda_1 + \lambda_2$ 双光子跃迁. 从图 11(c), (f) 可看出, 第 1 束激光频率与 Nd-150 共振时, 钕奇 同位素的第 2 步谱线峰位置与 $\lambda_1 + \lambda_2$ 双光 子跃迁决定.

具体到图 10(b) 青色标记的选择性光电离效 果,该组工况的计算条件为 $f_{12} = f_{23} = 0$, IS_{23,148} = -1000 MHz, $A_{3,145} = -100$ MHz. Nd-145 主要按照 图 11(a), (b) 中品红色实线所示的 $F_1 = 7.5 \rightarrow$ $(F_2 = 8.5) \rightarrow F_3 = 9.5$ 、黑色实线所示的 $F_1 = 6.5$ $\rightarrow (F_2 = 7.5) \rightarrow F_3 = 8.5$ 、青色实线所示的 $F_1 =$ $5.5 \rightarrow (F_2 = 6.5) \rightarrow F_3 = 7.5$ 等跃迁通道发生近 共振 $\lambda_1 + \lambda_2$ 双光子跃迁,相应的 Nd-143 $\lambda_1 + \lambda_2$ 双 光子跃迁通道则如图 11(c), (d) 所示,上述通道 恰好为跃迁强度靠前的超精细跃迁通道,因此该组 工况下,激光频率与 Nd-150 共振时, 钕奇同位素 电离率较大,成为主要的杂质同位素.

	衣 11 Nd-150 半度取低时的钗问位系远择性尤电离效未
Table 11.	The selective photoionization effects of Nd isotopes in the case of the lowest Nd-150 abundance.

- - 士库目低时的比同位素处权极业力或涉用

线宽/GHz								
	Nd-150	Nd-148	Nd-146	Nd-145	Nd-144	Nd-143	Nd-142	
1.0, 1.0	47.45	24.25	2.66	6.69	0.54	18.26	0.14	
0.5, 1.0	52.04	20.13	1.76	5.41	0.39	20.17	0.11	
0.3, 1.0	53.16	19.23	1.64	5.20	0.37	20.30	0.10	
1.0, 0.5	51.22	20.98	1.80	5.42	0.40	20.08	0.11	
1.0, 0.3	52.23	20.14	1.69	5.21	0.38	20.24	0.10	
0.3, 0.3	64.99	6.85	0.71	3.01	0.22	24.14	0.08	
0.5, 0.5	60.70	11.03	0.93	3.60^{*}	0.26	23.39^\dagger	0.08	

注: 表中工况如图10(b)中的青色标记所示, $f_{12} = f_{23} = 0$, IS_{23,148} = -1000 MHz, $A_{3,145} = -100$ MHz; "*", "[†]"对应的奇同位素第二激发 态布居率随时间的变化曲线分别与图12(a), (b)相对应.

Table 12. The resonance frequency of Nd even isotopes.										
共振位置	Nd-150	Nd-148	Nd-146	Nd-144	Nd-142					
$ u_{12}/\mathrm{MHz} $	0	1126.9	2009.2	2827.7	3700					
$ u_{23}/\mathrm{MHz} $	0	-1000	-1660	-2320	-3000					
$\nu_{12}+\nu_{23}/\mathrm{MHz}$	0	126.9	349.2	507.7	700					

表 12 钕偶同位素共振位置

注: 表中工况如图10(b)中的青色标记所示, IS_{23,148} = -1000 MHz, A_{3,145} = -100 MHz.



Fig. 11. The hyperfine transition paths of Nd odd isotopes: (a) λ_1 of Scheme No. 1, Nd-145; (b) the imagined λ_2 , Nd-145; (c) the second spectral line and $\lambda_1 + \lambda_2$ two-photon transition of Nd-145; (d) λ_1 of Scheme No. 1, Nd-143; (e) the imagined λ_2 , Nd-143; (f) the second spectral line and $\lambda_1 + \lambda_2$ two-photon transition of Nd-143.

另外, IS_{23,148} = -1000 MHz, $A_{3,145}$ = -100 MHz, $f_{12} = f_{23} = 0$, $b_{12} = b_{23} = 0.5$ GHz 时钕奇同位素 第二激发态布居率随时间的变化图如图 12 所示, 其中 Nd-145 布居率和纵轴局部放大图分别如 图 12(a), (b) 所示, Nd-143 布居率和纵轴局部放 大图分别如图 12(c), (d) 所示,图 12 中实线的颜 色表示第二激发态能级的 *F* 值.图 12(a), (b) 分别 与表 11"*","""的工况相对应, $f_{12} = f_{23} = 0$ 在第 2 步谱线的位置如图 11(c), (f) 中的品红色菱形所示.可见,布居率按照 F_3 由大至小的顺序依次降低,该顺序与上述的 $\lambda_1 + \lambda_2$ 双光子跃迁强度顺序相对应.

根据图 10 可知,当 IS_{23,148} ≥ 300 MHz 时, 在 $b_{12} \leq 0.5$ GHz, $b_{23} \leq 1.0$ GHz,平行线偏振的 典型激光参数下可实现 Nd-150 丰度大于 95%,与 电磁法产品丰度相当,并且此时钕奇同位素的超精



Fig. 12. The population of the second excited state of Nd odd isotopes versus time: (a) Nd-145; (b) Nd-145, the partial enlarged view of the vertical axis in the range of $[0, 2 \times 10^{-4}]$; (c) Nd-143; (d) Nd-143, the partial enlarged view of the vertical axis in the range of $[0, 6 \times 10^{-5}]$.

细结构对 Nd-150 电离的影响较小. 在此基础上压 窄激光线宽, 能够在保持电离率的同时下进一步提 升 Nd-150 丰度, 超过电磁法产品丰度. 综上所述, 后续原子光谱实验应着重寻找同位素位移 IS_{23,148} ≥ 300 MHz、第二激发态角动量 $J_3 = 6$ 的第 2 步跃 迁, 第 2 步跃迁的约化电偶极矩达到路径一的 30% 即可满足丰度要求. 基于激光法可获得高丰度 Nd-150 同位素主要归因于以下 3 点的综合作用: 1) Nd-148, Nd-150 间的同位素位移相较于其他同位素 对更为显著, 这是由于 Nd-148, Nd-150 间的均方 根核电荷半径差异约是其他同位素对的 1.5倍^[32]; 2) 钕奇同位素超精细分裂程度相对较小, 对 Nd-150 电离的影响较低; 3) 线宽等激光参数与钕原子 光谱参数之间的相互匹配, 窄线宽激光的使用降低 了其他杂质同位素的电离率.

4 结 论

富集钕-150同位素在核工业、科学研究等领 域有着重要应用.基于高效高选择性多步电离路 径,原子蒸气激光同位素分离法能够实现钕同位素 分离,但现用路径第2步跃迁的同位素位移几乎为 零,导致产品中 Nd-150 丰度偏低.为提高 Nd-150 选择性,在假定电离路径参数取值的条件下开展钕 同位素选择性光电离理论计算,评估丰度满足要求 时电离路径的同位素位移、超精细结构等参数水 平,指导后续原子光谱实验.

本文基于考虑超精细结构和能级简并的三步 电离模型,通过与文献数据对比获得了现用路径分 支比的最优拟合值 $\beta_{12} = 0.15$, $\beta_{23} = 0.5$, 评估了 现用路径在不同线宽下的 Nd-150 丰度水平; 为 优化电离路径,在沿用第 1 步跃迁,采用跃迁强 度更弱的第 2 步跃迁等前提下构造假定电离路径, 开展所有钕同位素的电离率计算,评估不同同位素 位移、超精细结构下的 Nd-150 丰度.数值计算发 现 IS_{23,148} ≥ 300 MHz 时,在 $b_{12} \leq 0.5$ GHz, $b_{23} \leq$ 1.0 GHz,平行线偏振的典型激光参数下可实现与 电磁法相当的 Nd-150 丰度 (> 95%).在此基础上 压窄激光线宽,能够在保持电离率的同时获得超过 电磁法的 Nd-150 产品.后续原子光谱实验应着重 寻找同位素位移 *IS*_{23,148} ≥ 300 MHz、第二激发态 角动量 *J*₃ = 6 的第 2 步跃迁,第 2 步跃迁的约化 电偶极矩达到现用路径的 30% 即可满足丰度要求.

参考文献

- Akhmedzhanov R A, Gushchin L A, Nizov N A, Nizov V A, Sobgayda D A, Zelensky I V 2024 JETP Lett. 119 834
- [2] Liang P J, Liu X, Li P Y, Zhou Z Q, Li C F, Guo G C 2020 J. Opt. Soc. Am. B 37 1653
- [3] Broderick K, Lusk R, Hinderer J, Griswold J, Boll R, Garland M, Heilbronn L, Mirzadeh S 2019 Appl. Radiat. Isot. 144 54
- [4] Hu F, Cutler C S, Hoffman T, Sieckman G, Volkert W A, Jurisson S S 2002 Nucl. Med. Biol. 29 423
- [5] Committee A 2015 Standard Practice for Analysis of Spent Nuclear Fuel to Determine Selected Isotopes and Estimate Fuel Burnup
- [6] Suryanarayana M V 2022 Sci. Rep. 12 11471
- [7] Barabash A S, Belli P, Bernabei R, Boiko R S, Cappella F, Caracciolo V, Cerulli R, Danevich F A, Fang D L, Ferella F, Incicchitti A, Kobychev V V, Konovalov S I, Laubenstein M, Leoncini A, Merlo V, Nisi S, Niţescu O, Poda D V, Polischuk O G, Shcherbakov I B K, Šimkovic F, Timonina A, Tinkova V S, Tretyak V I, Umatov V I 2025 *Eur. Phys. J. C* 85 174
- [8] https://www.isotopes.gov/products/neodymium
- [9] Letokhov V, Ryabov E (Trigg G L ed) 2004 Encyclopedia of Applied Physics (New York: Wiley) pp1015–1028
- [10] Babichev A P, Grigoriev I S, Grigoriev A I, Dorovskii A P, D'Yachkov A B, Kovalevich S K, Kochetov V A, Kuznetsov V A, Labozin V P, Matrakhov A V, Mironov S M, Nikulin S A, Pesnya A V, Timofeev N I, Firsov V A, Tsvetkov G O, Shatalova G G 2005 *Quantum Electron.* **35** 879
- [11] Grigoriev I, Diachkov A, Kovalevich S, Labosin V, Mironov S, Nikulin S, Pesnia A, Firsov V, Shatalova G, Tsvetkov G 2003 Proc. SPIE Int. Soc. Opt. Eng. 5121 406
- [12] D'Yachkov A B, Kovalevich S K, Labozin V P, Mironov S M, Panchenko V Y, Firsov V A, Tsvetkov G O, Shatalova G G

2012 Quantum Electron. 42 953

- [13] Kramida A, Ralchenko Y, Reader J, (NIST ASD Team) 2024 NIST Atomic Spectra Database (Gaithersburg, MD: National Institute of Standards and Technology)
- [14] Miyabe M, Iwata Y, Tomita H, Morita M, Sakamoto T 2024 Spectrochim. Acta Part B At. Spectrosc. 221 107036
- [15] van Leeuwen K A H, Eliel E R, Post B H, Hogervorst W 1981 Z. Phys. A 301 95
- [16] Zyuzikov A D, Mishin V I, Fedoseev V N 1988 Opt. Spectrosc. 64 287
- [17] D'Yachkov A B, Gorkunov A A, Labozin A V, Mironov S M, Panchenko V Y, Firsov V A, Tsvetkov G O 2018 Quantum Electron. 48 75
- [18] Zhang J Y, Xiong J Y, Wei S Q, Li Y F, Lu X Y 2023 Acta Phys. Sin. 72 193203 (in Chinese) [张钧尧, 熊静逸, 魏少强, 李 云飞, 卢肖勇 2023 物理学报 72 193203]
- [19] Campbell P, Moore I D, Pearson M R 2016 Prog. Part. Nucl. Phys. 86 127
- [20] Yang X F, Wang S J, Wilkins S G, Ruiz R F G 2023 Prog. Part. Nucl. Phys. 129 104005
- [21] Lu X Y, Wang L D 2023 Chin. Phys. B 32 53204
- [22] Lu X Y, Wang L D 2024 Appl. Radiat. Isot. 210 111334
- [23] Demtröder W 2008 Laser Spectroscopy: Vol. 1 Basic Principles (Berlin: Springer) pp5–60
- [24] Greenland P T 1990 Contemp. Phys. **31** 405
- [25] Axner O, Gustafsson J, Omenetto N, Winefordner J D 2004 Spectrochim. Acta Part B At. Spectrosc. 59 1
- [26] Agarwal G S 1970 Phys. Rev. A 1 1445
- [27] Lambropoulos P, Lyras A 1989 Phys. Rev. A 40 2199
- [28] Blagoev K B, Komarovskii V A 1994 At. Data Nucl. Data Tables 56 1
- [29] Childs W J, Goodman L S 1972 Phys. Rev. A 6 1772
- [30] Shen X P, Wang W L, Zhai L H, Deng H, Xu J, Yuan X L, Wei G Y, Wang W, Fang S, Su Y Y, Li Z M 2018 Spectrochim. Acta Part B At. Spectrosc. 145 96
- [31] Lu X Y, Wang L D 2025 J. Phys. B: At. Mol. Opt. Phys. 58 025001
- [32] Wakasugi M, Horiguchi T, Guo Jin W, Sakata H, Yoshizawa Y 1990 J. Phys. Soc. Jpn. 59 2700

Numerical studies of three-step selective photoionization of neodymium-150 isotope^{*}

WANG Lide $^{1)2}^{\dagger}$ ZHANG Junyao $^{1)2}$ LU Xiaoyong $^{1)2}$

1) (National Key Laboratory of Particle Transport and Separation Technology, Tianjin 300180, China)

2) (Research Institute of Physical and Chemical Engineering of Nuclear Industry, Tianjin 300180, China)

(Received 2 March 2025; revised manuscript received 3 April 2025)

Abstract

The enriched neodymium-150 (Nd-150) isotope has important applications in fields such as nuclear industry and basic scientific research. The Nd isotope separation can be conducted by atomic vapor laser isotope separation (AVLIS), where the target isotope is selectively ionized through the $\lambda_1 = 596 \text{ nm} \rightarrow \lambda_2 = 579 \text{ nm} \rightarrow \lambda_2 = 5$ $\lambda_3 = 640$ nm photoionization scheme, and non-target isotopes remain neutral due to the frequency-detuned excitation. Subsequently, an external electric field is applied to extract the ions from the laser-produced plasma. The Nd-150 abundance in the product cannot meet the requirement of the application, attributed to the nearly negligible isotope shift of the $\lambda_2 = 579$ nm transition, thus resulting in the excess ionization of non-target isotopes. A new high-selectivity photoionization scheme is desirable to address this limitation, and its expected parameter values can be determined through numerical calculations prior to the time-consuming atomic spectroscopy experiments. In this study, a three-step selective photoionization model is established based on the density matrix theory, with the consideration of the hyperfine structures and magnetic sublevels. This model allows the flexible adjustments of atomic parameters (e.g. branching ratio, isotope shift, hyperfine constant) and laser parameters (e.g. frequency, power density, bandwidth, polarization), while the ionization probabilities of magnetic sublevel transitions can be quantitatively predicted. For the existing schemes, the branching ratios are determined by comparing literature data with numerical results, and the Nd-150 abundance values under different laser bandwidths are evaluated. Further, an alternative scheme is numerically explored on the assumption that the first transition remains unchanged and the second transition has a more significant isotope shift and a smaller branching ratio, and the Nd-150 abundance values under different combinations of isotope shifts, hyperfine structures, and laser bandwidths are evaluated, with all the natural Nd isotopes included. From the numerical results, a scheme with the angular momentum of the second excited state $J_3 = 6$, the isotope shift between Nd-148 and Nd-150 $IS_{23,148} \ge 300$ MHz, and a lower reduced dipole matrix element of the second transition reaching approximately 30% of that of $\lambda_2 = 579$ nm, can produce the high-abundance Nd-150 (>95%, equivalent to that of the electromagnetic separation method) under the bandwidths: $b_{12} \leq 0.5$ GHz and $b_{23} \leq$ 1.0 GHz, and parallel linear-polarized lasers. Using the lasers with narrower bandwidth can achieve higher abundance, which is superior to the electromagnetic separation method. The expected high-abundance Nd-150 can be attributed to the combined effects of multi-factors: the larger isotope shift between Nd-150 and Nd-148 than that between other adjacent isotope pairs, the insignificant hyperfine splitting of odd isotopes, and the match between narrow-bandwidth lasers and Nd I spectroscopic parameters. These parameter values can serve as benchmarks helpful for experimental parameter selection in the forthcoming high-precision spectroscopy experiments.

Keywords: Nd-150, selective photoionization, isotope shift, hyperfine structure

PACS: 32.10.Fn, 32.80.-t

DOI: 10.7498/aps.74.20250262

CSTR: 32037.14.aps.74.20250262

^{*} Project supported by the National Key Laboratory of Particle Transport and Separation Technology (Grant No. SYSJJ-2022101).

[†] Corresponding author. E-mail: wld15@tsinghua.org.cn

物理学报Acta Physica Sinica





Institute of Physics, CAS

钕−150同位素三步选择性光电离理论研究

王立德 张钧尧 卢肖勇

Numerical studies of three-step selective photoionization of neodymium-150 isotope WANG Lide ZHANG Junyao LU Xiaoyong

引用信息 Citation: Acta Physica Sinica, 74, 113201 (2025) DOI: 10.7498/aps.74.20250262 CSTR: 32037.14.aps.74.20250262 在线阅读 View online: https://doi.org/10.7498/aps.74.20250262 当期内容 View table of contents: http://wulixb.iphy.ac.cn

您可能感兴趣的其他文章

Articles you may be interested in

磁场中HD分子振转跃迁的超精细结构

Hyperfine structure of ro-vibrational transition of HD in magnetic field 物理学报. 2021, 70(17): 170301 https://doi.org/10.7498/aps.70.20210512

氢分子离子超精细结构理论综述

Review of the hyperfine structure theory of hydrogen molecular ions 物理学报. 2024, 73(20): 203104 https://doi.org/10.7498/aps.73.20241101

原子兰姆位移与超精细结构中的核结构效应

Nuclear structure effects to atomic Lamb shift and hyperfine splitting 物理学报. 2024, 73(20): 202101 https://doi.org/10.7498/aps.73.20241063

高电荷态类硼离子²P_{3/2}一²P_{1/2}跃迁的实验和理论研究进展

Experimental and theoretical research progress of ${}^{2}P_{1/2} {}^{2}P_{3/2}$ transitions of highly charged boron-like ions 物理学报. 2024, 73(20): 203102 https://doi.org/10.7498/aps.73.20241190

BrF分子电磁偶极跃迁转动超精细微波谱模拟

Simulation of hyperfine-rotational spectrum of electromagnetic dipole transition rotation of BrF molecules 物理学报. 2023, 72(4): 043301 https://doi.org/10.7498/aps.72.20221957

铷簇同位素效应的量化研究

Quantitative study on isotope effect of rubidium clusters 物理学报. 2023, 72(18): 182101 https://doi.org/10.7498/aps.72.20230778