

# 红外聚焦脉冲激光场中 同位素浓缩过程的动力学处理\*

马 兴 孝    胡 照 林  
(中国科学技术大学)

## 提      要

本文从动力学理论出发,导出了在红外聚焦脉冲激光场中分子离解速率和同位素浓缩系数对激光脉冲能量、透镜焦距、激光脉冲辐照次数等参数的关系式。理论公式与  $\text{SF}_6$  的有关实验结果作了比较,符合得很好。此外,通过理论与实验的比较,提供了进一步研究离解机理的有益信息。

## 一、引      言

1975 年, J. L. Lyman 等人<sup>[1]</sup>和 P. B. Амбарцумян 等人<sup>[2]</sup>几乎同时报道了利用选频的强红外  $\text{CO}_2$  激光脉冲使  $\text{SF}_6$  分子离解以浓缩硫同位素的实验。前者获得的浓缩系数为 33,后者达到了 2800。随后, G. Hancock 等人<sup>[3]</sup>进行了旨在考察该浓缩过程规律的实验;我国一些单位也利用 TEA  $\text{CO}_2$  激光器的自然振荡谱线实现了这一分离。其中,中国科学技术大学和安徽光学精密机械研究所协作组<sup>[4]</sup>获得的浓缩系数为 58。近两年,相继出现了大量进一步考察  $\text{SF}_6$  在强红外场中离解机理及同位素浓缩规律的报道。

尽管目前对离解机理尚无一致看法,但这并不妨碍我们根据已有实验事实对浓缩过程作动力学的分析处理。

归纳起来,对  $\text{SF}_6$  所进行的实验表现出如下基本规律:

- 1) 浓缩系数的对数  $\ln \beta$  正比于激光脉冲辐照次数  $n$ <sup>[3]</sup>;
- 2)  $\ln \beta$  正比于  $E^{3/2}$  ( $E$  是单个激光脉冲的能量)<sup>[3]</sup>;
- 3)  $\ln \beta$  正比于聚焦透镜的焦距  $f$ <sup>[5]</sup>。

本文将首先针对“理想脉冲”的情况导出脉冲辐照下分子离解速率及浓缩系数的表达式,然后基于“阈值辐射功率密度”的假定,进一步将这些表达式与实验的物理条件联系起来,最后通过理论与实验的比较,引伸出某些有意义的结论。

所得的理论结果,成功地概括并解释了上述实验规律,并可为离解机理的研究提供某些有益的信息。

\* 1977 年 11 月 14 日收到。

## 二、离解速率及浓缩系数的表达式

设所分离的对象为同位素分子  $A'$  和  $A$  (例如  $^{32}\text{SF}_6$  和  $^{34}\text{SF}_6$ ), 它们在激光辐照前的数目分别为  $N'_0$  和  $N_0$ , 让  $A'$  表示被激光选择激发的分子. 考虑到脉冲聚焦激光束在空间与时间上的非均匀性, 处于各能级上的  $A'$  和  $A$  分子的密度 (单位体积内的分子数)  $\rho'_l$  和  $\rho_l$  的时变率为

$$\begin{aligned}\frac{\partial \rho'_l}{\partial t} &= -\omega'_l + \nabla \cdot (\mu \nabla \rho'_l), \\ \frac{\partial \rho_l}{\partial t} &= -\omega_l + \nabla \cdot (\mu \nabla \rho_l),\end{aligned}\quad (l = 0, 1, 2, \dots, m) \quad (1)$$

该方程组中,  $l$  代表分子能级的标号,  $m$  表示所考虑的最高能级.  $\omega'_l$  和  $\omega_l$  的具体形式取决于所考虑的动力学历程, 此处它们具有“当地产生率”的意义. 右端的第二项表示扩散引起的分子迁移.  $\mu$  为扩散系数.

(1) 式是一个关于  $\{\rho'_l\}$  和  $\{\rho_l\}$  的偏微分方程组, 而且一般说来,  $\omega'_l$  和  $\omega_l$  不一定线性地依赖于  $\{\rho'_l\}$  和  $\{\rho_l\}$ . 下面我们将说明, 对于激光的“理想脉冲”, 方程组 (1) 将得到简化.

所谓“理想脉冲”是指: 相邻两脉冲间的间歇时间足够长, 在此期间内, 扩散和弛豫过程得以充分进行, 以致在任一脉冲的起始时刻, 其上一脉冲辐照所形成的分子在空间的非均匀分布和按能级的非平衡分布业已消除; 同时脉冲的持续时间  $\delta t$  足够短, 以致在此期间分子扩散项可以略去<sup>1)</sup>.

显然, 在上述“理想脉冲”的情况下, 方程组 (1) 可以分段对每个脉冲持续时间范围求解, 并且在此期间内不考虑扩散项. 即对于第  $i$  个脉冲的辐照期间  $[t_i, t_i + \delta t]$ ,

$$\frac{\partial \rho'_l}{\partial t} = -\omega'_l, \quad \frac{\partial \rho_l}{\partial t} = -\omega_l \quad (l = 0, 1, 2, \dots, m), \quad (2)$$

同时初始条件为

$$(\rho'_l, \rho_l)_{t=t_i} = \left( \frac{N'_{l,i-1}}{V}, \frac{N_{l,i-1}}{V} \right), \quad (3)$$

式中  $V$  为容器的容积,  $N'_{l,i-1}$ ,  $N_{l,i-1}$  分别表示第  $i$  个脉冲起始时刻容器内处于  $l$  能级的  $A'$  和  $A$  分子的数目, 它们对应于上一脉冲完毕后  $A'$  和  $A$  分子总数  $N'_{i-1}$ ,  $N_{i-1}$  的平衡分布.

方程组 (2) 是以空间坐标为参变量的关于时间的一阶常微分方程组, 其初始条件只依赖于上一脉冲后的  $A'$ ,  $A$  分子数目  $N'_{i-1}$  和  $N_{i-1}$ . 当浓缩过程历程的模型确定之后,  $\omega'_l$  和  $\omega_l$  的具体形式随之确定, 方程组便可实际求解. 关于模型和求解, 这里不予讨论. 进一步, 当 (2) 式解出之后, 有

$$\begin{aligned}N'_i &= \int_{(V)} \sum_l \rho'_l dV = \frac{N'_{i-1}}{V} \int_{(V)} \exp \left( - \int_{t_i}^{t_i+\delta t} C'_i dt \right) dV, \\ N_i &= \int_{(V)} \sum_l \rho_l dV = \frac{N_{i-1}}{V} \int_{(V)} \exp \left( - \int_{t_i}^{t_i+\delta t} C_i dt \right) dV,\end{aligned}\quad (4)$$

1) 分析表明, 对于  $\delta t \leq 10^{-7}$  秒, 间歇时间  $\geq 1$  秒的脉冲序列, 若被辐照气体压力为数托, 容器尺寸为 10 厘米量级, 上述理想脉冲的条件便能满足.

式中

$$C'_i \equiv -\frac{1}{\rho'} \frac{\partial \rho'}{\partial t}, \quad C_i \equiv -\frac{1}{\rho} \frac{\partial \rho}{\partial t}; \quad (5)$$

$$\rho' \equiv \sum_{l=0}^m \rho'_{l,i}, \quad \rho \equiv \sum_{l=0}^m \rho_{l,i}; \quad (6)$$

$$N'_i \equiv \sum_{l=0}^m N_{l,i}, \quad N_i \equiv \sum_{l=0}^m N_{l,i}. \quad (7)$$

这里  $N'_i$  和  $N_i$  分别为第  $i$  个脉冲结束时容器中  $A'$  和  $A$  分子的总数。联系到 (3) 式和 (7) 式, 显然这里假定了在脉冲间歇时间中, 分子不发生离解。

由 (4) 式, 可得到下面的递推关系式:

$$\frac{N'_i}{N'_{i-1}} = 1 - \Delta'_i, \quad \frac{N_i}{N_{i-1}} = 1 - \Delta_i. \quad (8)$$

这里

$$\Delta'_i \equiv \frac{1}{V} \int_{(Ve)} \left( 1 - \exp \left( - \int_{t_i}^{t_i+\delta t} C'_i dt \right) \right) dV, \quad (9)$$

$$\Delta_i \equiv \frac{1}{V} \int_{(Ve)} \left( 1 - \exp \left( - \int_{t_i}^{t_i+\delta t} C_i dt \right) \right) dV.$$

(9) 式中,  $Ve$  为  $C'_i, C_i \neq 0$  的区域, 可称它为有效辐照区。利用 (8) 式的递推关系, 便得到  $n$  个激光脉冲相继辐照后容器中残留的  $A'$  和  $A$  分子的数目

$$\frac{N'_n}{N'_0} = \prod_{i=1}^n (1 - \Delta'_i), \quad \frac{N_n}{N_0} = \prod_{i=1}^n (1 - \Delta_i). \quad (10)$$

因而, 浓缩系数即为

$$\beta_n \equiv \frac{N_n}{N_0} / \frac{N'_n}{N'_0} = \prod_{i=1}^n \frac{1 - \Delta_i}{1 - \Delta'_i}. \quad (11)$$

考虑到

$$\Delta'_i, \Delta_i \ll 1 \quad (12)$$

常常成立, 因此

$$\begin{aligned} \ln \beta_n &= \sum_{i=1}^n \ln \frac{(1 - \Delta_i)}{(1 - \Delta'_i)} \simeq \sum_{i=1}^n (\Delta'_i - \Delta_i) \\ &= \frac{1}{V} \sum_{i=1}^n \int_{(Ve)} \left[ \exp \left( - \int_{t_i}^{t_i+\delta t} C_i dt \right) - \exp \left( - \int_{t_i}^{t_i+\delta t} C'_i dt \right) \right] dV, \end{aligned} \quad (13)$$

此即为我们动力学处理所得的一般结果。

### 三、有效区的近似处理

要对容器内分子发生离解的有效辐照区域作精细的计算是困难的。我们在这里提出一个简化光束模型, 它可以方便地计算出符合实验规律的结果。

假定聚焦后的激光束可视为图 1 所示的正圆锥台形, 并且辐射场在光束截面上为均匀分布, 光束通过气体时因吸收而引起的强度衰减不大(可以忽略)。于是, 光束在截面  $S$  处的平均功率密度可以写成

$$I = E / (S \cdot \delta t). \quad (14)$$

以  $S_L$  代表透镜处有效光束的截面积,  $S_f$  代表聚焦后焦斑处的截面积, 当  $S_f \ll S_L$  时, 将有

$$l/f \simeq \sqrt{S/S_L}, \quad (15)$$

式中  $f$  为透镜的焦距,  $l$  为截面  $S$  距焦斑的距离. 我们假定: 对分子的离解存在一个阈值辐射功率密度  $I_T$  (当  $I < I_T$  时, 分子不离解,  $C'_i = C_i = 0$ ). 于是, 由 (14) 和 (15) 式, 在有效区上的积分可化为

$$\begin{aligned} \int_{(ve)} dV &= 2 \int_0^{l_T} S dl = \frac{f}{\sqrt{S_L}} \int_{S_f}^{S_T} \sqrt{S} dS \\ &= \frac{f}{\sqrt{S_L}} \left( \frac{E}{\delta t} \right)^{3/2} \int_{I_T}^{I_f} \frac{dI}{I^{5/2}} = \frac{f}{\sqrt{S_L}} \left( \frac{E}{\delta t I_T} \right)^{3/2} \int_1^{I_f/I_T} \frac{dy}{y^{5/2}}, \end{aligned} \quad (16)$$

式中  $S_T$  和  $l_T$  分别为阈值功率密度  $I_T$  处的光束截面和它至焦斑的距离;  $I_f$  为焦斑处的辐射功率密度;  $y = I/I_T$ . 将 (16) 式代入 (13) 式, 便得到

$$\ln \beta_n = \frac{f}{V \sqrt{S_L}} \left( \frac{E}{I_T \delta t} \right)^{3/2} \sum_{i=1}^n \int_1^{I_f/I_T} \left[ \exp \left( - \int_{t_i}^{t_i+\delta t} C_i dt \right) - \exp \left( - \int_{t_i}^{t_i+\delta t} C'_i dt \right) \right] \frac{dy}{y^{5/2}}. \quad (17)$$

#### 四、与 $\text{SF}_6$ 实验的比较及分析

##### 1) $\ln \beta_n$ 与激光单脉冲能量 $E$ 及透镜焦距 $f$ 的关系

由 (17) 式可知, 当  $I_f \gg I_T$  时, 可以将  $y$  的积分上限外推至  $\infty$ , 并有

$$\begin{aligned} \ln \beta_n &= \frac{f}{V \sqrt{S_L}} \left( \frac{E}{I_T \delta t} \right)^{3/2} \sum_{i=1}^n \left\{ \int_1^{\infty} \left[ \exp \left( - \int_{t_i}^{t_i+\delta t} C_i dt \right) - \exp \left( - \int_{t_i}^{t_i+\delta t} C'_i dt \right) \right] \frac{dy}{y^{5/2}} \right. \\ &\quad \left. + o \left[ \left( \frac{I_T}{I_f} \right)^{3/2} \right] \right\}, \end{aligned} \quad (17')$$

略去  $(I_T/I_f)^{3/2}$  的小量便得到

$$a) \ln \beta_n \propto E^{3/2}; \quad b) \ln \beta_n \propto f.$$

此即为文献 [3] 和 [5] 中所给出的实验规律 (图 2 引自文献 [3], 图 3 引自文献 [5]).

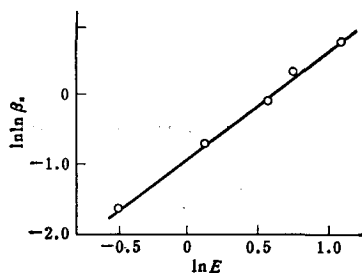


图 2  $\ln \ln \beta_n - \ln E$  曲线

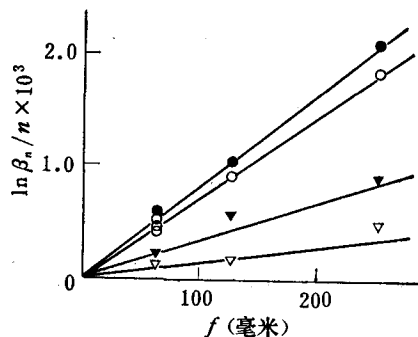


图 3  $\ln \beta_n - f$  曲线

●, ○, ▼, ▽ 对应于不同的气体和添加物比例

所得  $\ln \beta_n$  对  $E$  及  $f$  的关系与  $\text{SF}_6$  的实验规律一致, 这使我们进一步看到,  $\text{SF}_6$  分子离解的阈值功率密度是比较低的。若不然, 在其它条件固定的情况下,  $E$  或  $f$  的改变所带来的积分上限变动将对  $\ln \beta_n$  产生不可忽略的影响。因此,  $\ln \beta \propto E^{3/2}$  的规律, 可为我们提供关于  $I_T$  大小的知识。

## 2) $\ln \beta_n$ 与激光脉冲辐照次数 $n$ 的关系

在 (17) 式中, 若  $C'_i = C'$ ,  $C_i = C$  ( $i = 1, 2, \dots, n$ ), 则

$$\ln \beta_n = \frac{f}{V\sqrt{S_L}} \left( \frac{E}{I_T \delta t} \right)^{3/2} \left\{ \int_1^{I_f/I_T} \left[ \exp \left( - \int_0^{\delta t} C dt \right) - \exp \left( - \int_0^{\delta t} C' dt \right) \right] \frac{dy}{y^{5/2}} \right\} \cdot n. \quad (17'')$$

由此得到

$$\ln \beta_n \propto n.$$

图 4 给出的是  $\ln \beta_n$  对  $n$  的实验规律。理论与实验的一致表明, 在文献 [3] 中的实验条件下, 由于分子离解而造成的  $\text{SF}_6$  分压的变化对其离解“速率系数”  $C'_i$  和  $C_i$  没有显著影响。

## 3) $\ln \beta_n$ 与激光脉冲持续时间 $\delta t$ 的关系

考虑到

$$\int_{t_i}^{t_i+\delta t} C'_i dt, \quad \int_{t_i}^{t_i+\delta t} C_i dt \ll 1, \quad (18)$$

(17'') 式可写成

$$\ln \beta_n \simeq \frac{f}{V\sqrt{S_L}} \left( \frac{E}{I_T \delta t} \right)^{3/2} n \int_1^{I_f/I_T} \left[ \int_0^{\delta t} (C' - C) dt \right] \frac{dy}{y^{5/2}}. \quad (19)$$

设在积分范围内,  $(C' - C) \propto \delta t^p$  ( $p$  为某数值), 则可由 (19) 式得出

$$\ln \beta_n \propto \delta t^{p-\frac{1}{2}}. \quad (20)$$

这说明,  $\ln \beta_n$  与激光脉冲持续时间  $\delta t$  的关系的实验研究, 将有助于探讨  $C'$  和  $C$  随时间的变化, 从而为红外强场中分子离解的动力学历程(所谓红外多光子离解机理)的分析提供有益的信息。

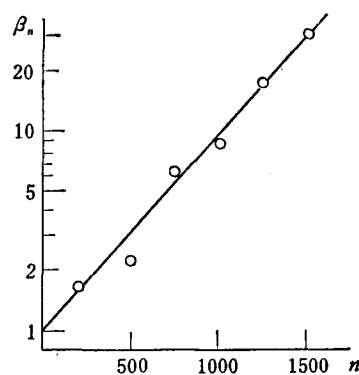


图 4  $\ln \beta_n - n$  曲线  
(引自文献 [3])

## 五、讨 论

在推导 (16) 式时, 如果光束的阈值功率密度所对应的截面  $S_T$  落在气体容器器壁之外, 那么  $y$  的积分下限应作相应改变:

$$\ln \beta_n = \frac{f}{V\sqrt{S_L}} \left( \frac{E}{I_T \delta t} \right)^{3/2} \sum_{i=1}^n \int_{I_C/I_T}^{I_f/I_T} \left( \exp \left( - \int_{t_i}^{t_i+\delta t} C_i dt \right) - \exp \left( - \int_{t_i}^{t_i+\delta t} C'_i dt \right) \right) \frac{dy}{y^{5/2}},$$

式中  $I_C$  为光束在容器器壁处的功率密度(容器中心置于光束焦斑处)。

另外, 我们的理论结果是在  $S_f \ll S_L$  时得到的, 这一般只适用于  $f$  不太大的情况。对

1) 在  $y$  的积分上限邻近, (18) 式可能满足得不好, 但因  $y^{-5/2}$  已很小, 因而它对整个积分值影响不大。

于长焦距(例如  $f \sim 10^2$  厘米量级), 焦斑截面积往往较大, 以致此条件不能满足, 因而有效区上积分的计算应作相应的修正。

总的来说, 由本文所用简化光束模型得到的结果与实验的符合是令人满意的。我们并可用它来解释文献 [1, 2, 4] 中  $SF_6$  分离效果相差甚大的原因。

本文写作过程中, 曾同张允武、孔繁敖、章吉祥、俞书勤、解笑湘、米琪等同志作过有益的讨论, 特此致意。

### 参 考 文 献

- [1] J. L. Lyman *et al.*, *Appl. Phys. Lett.*, **27** (1975), 87.
- [2] Р. В. Амбарцумян, *и др.*, *ЖЭТФ*, **69** (1975), 1956.
- [3] G. Hancock *et al.*, *Optics Communications*, **16** (1976), 177.
- [4] 安徽光学精密机械研究所和中国科学技术大学协作组, *中国科学技术大学学报*, **6** (1976), 156.
- [5] P. Fettweis, M. Nève de Mévergnies, *Appl. Phys.*, **12** (1977), 219.

## THE KINETIC TREATMENT OF ISOTOPE ENRICHMENT PROCESS UNDER FOCUSED IR LASER PULSE

MA XING-XIAO     HU ZHAO-LIN

(University of Science and Technology of China)

### ABSTRACT

In this work, the expressions of molecular dissociation rate and isotope enrichment coefficient in an strong IR field, as the functions of the laser energy per pulse, the focal length of lens, the number of laser pulses, and etc., were derived by using the kinetic theory. The theoretical expression of isotope enrichment coefficient was compared with the experimental results for  $SF_6$ , and good agreement was found. In addition, the theoretical expressions compared with experiments would provide some useful informations of the molecular dissociation in the strong IR field.