

研究简报

激光多光子激励分子的同位素分离系数的数值计算

谭吉春 匡一中

(国防科技大学, 二〇四激光室, 长沙) (四川大学, 激光研究室, 成都)

关键词 同位素浓缩, 多光子激励, 数值算法。

一、引言

分离系数是用以评定激光辐照产物中同位素分离效果的重要技术指标之一。本文章导出一组分离系数计算公式, 供计算机模拟同位素分离过程以及预测和优选实验条件之用。

二、原理

三频场多光子离解同位素分子的原理如图1所示。在弱场  $\Omega_a$  和  $\Omega_b$  的共同激励下, 分子由基态跃迁到能级  $e_3$ , 跃迁方式分为以下两类<sup>[1]</sup>:

(1) 分子以步进跃迁方式被激发到能级  $e_3$

$$(\rho_{33})_{\text{步进}} \sim \frac{E^4 \cdot f_{12} \cdot f_{23}}{\Gamma_2 \cdot \Gamma_3} \cdot \text{Re} \left[ \frac{1}{\Gamma_{12} - i(\omega_{12} - \Omega_a + K_a \cdot v)} \cdot \frac{1}{\Gamma_{23} \mp i(\omega_{23} - \Omega_b + K_b \cdot v)} \right] \quad (1-A)$$

(2) 分子以双光子跃迁方式被激发到能级  $e_3$  时

$$(\rho_{33})_{\text{双光子}} \sim \frac{E^4 \cdot f_{12} \cdot f_{23}}{\Gamma_3} \left[ \text{Re} \frac{1}{\Gamma_{12} - i(\omega_{12} - \Omega_a + K_a \cdot v)} \cdot \frac{1}{\Gamma_{13} - i[\omega_{13} - (\Omega_a + \Omega_b) + (K_a + K_b) \cdot v]} \cdot \frac{1}{\Gamma_{23} - i(\omega_{23} - \Omega_b + K_b \cdot v)} \right] \quad (1-B)$$

式中,  $\rho_{33}$  为能级  $e_3$  的布居数; 分子的能级间距和弛豫速率分别记为  $\omega_{ij}$  和  $\Gamma_i$ , 振子强度为  $f_{ij}$ ;  $v$  为气体分子热运动速率。入射激光的波矢  $K_l = 2\pi/\lambda_l$ , ( $l = a, b$ ); 入射双频激光场的振幅近似相等, 记为  $E_a \approx E_b \approx E$ 。

在图1所示模型中, 因  $\Omega_a$  是强场, 凡已被  $\Omega_a$  和  $\Omega_b$  系至能级  $e_3$  的分子, “绝大部分”将被  $\Omega_a$  系至离解阈。因此, 设离解分子数  $N \cdot \rho_{da}$  近似等于能级  $e_3$  上的受激分子数  $N \cdot \rho_{33}$ , 即  $N \cdot \rho_{da} \approx N \cdot \rho_{33}$ ,  $N$  为单位体积内的分子总数, (当激励和离解场均为短脉冲时, 上式是一个较好的近似, 这已为实验所证实)。

设混合气体含两种组份: 分子A及其同位素I。在激光照射下, 分子A被选择性高

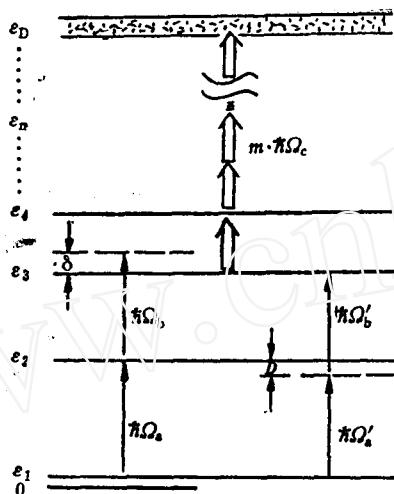


图 1 多光子激发和解离分子的能级示意图  
左侧箭头——步进跃迁；右侧箭头——双光子跃迁；双线箭头——准连续区到解离阈的跃迁。

解，从而实现组份 A 和 B 被分离(或 I 被浓缩)，此过程的分离系数  $S$  定义为

$$S(A/I) = \frac{\text{激光辐照后分子 A 的离解数} / \text{激光辐照前混合气中分子 A 的总数}}{\text{激光辐照后分子 I 的离解数} / \text{激光辐照前混合气中分子 I 的总数}} \quad (2)$$

对于图一所示的物理模型，可将(2)写成公式

$$S(A/I) \approx \frac{N_A \cdot (\rho_{33})_A / N_A \cdot (\rho_{11}^0)_A}{N_I \cdot (\rho_{33})_I / N_I \cdot (\rho_{11}^0)_I} \approx \frac{(\rho_{33})_A}{(\rho_{33})_I} \cdot G \quad (3)$$

式中， $G$  为混合气的同位素丰度， $G \approx (\rho_{11}^0)_I / (\rho_{11}^0)_A$ 。

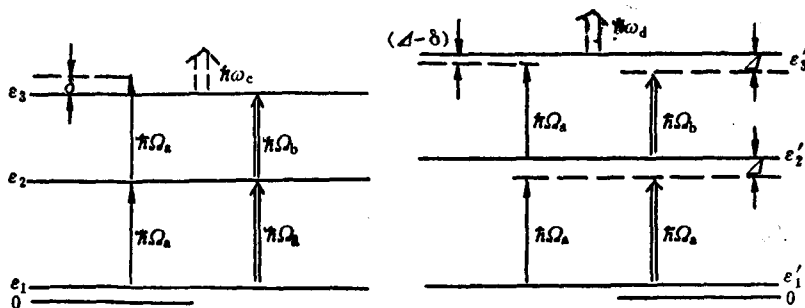


图 2 三能级的同位素选择性激发  
左图——分子 A 的共振激发；  
右图——由于吸收光谱的同位素位移  $\Delta$ ，分子 I 偏离共振。  
单箭头：表示单频场激发方式；双箭头：表示多频场激发方式。

### 三、讨论四种激发方式

#### 1. 分子在双频行波场中的步进跃迁激励

设入射的两束激光传播方向相同，但频率不相等( $\Omega_a > \Omega_b$ )，如图 2 所示。这两束光分别与分子 A 的能级跃迁  $e_1 \rightarrow e_2$  和  $e_2 \rightarrow e_3$  相共振，记为

$$\text{分子A共振步进跃迁} \begin{cases} |(\omega_{12})_A - \Omega_a| = 0 \\ |(\omega_{23})_A - \Omega_b| = 0 \end{cases} \quad (4-A)$$

与此同时，分子 I 吸收谱线相对于入射场  $\Omega_a$  和  $\Omega_b$  的失谐量均等于同位素位移量  $\Delta$ ，即

$$\text{同位素分子 I 离共振步进跃迁} \begin{cases} |(\omega_{12})_I - \Omega_a| = \Delta \\ |(\omega_{23})_I - \Omega_b| = \Delta \end{cases} \quad (4-B)$$

将(1-A)和(4)代入(3)，得到双频行波场激励下混合气体同位素分离系数的计算公式为

$$S(A/I)_{\text{双,行,步进}} \approx G \cdot F \cdot [1 + (\Delta/\gamma)^2]^2 \quad (5-A)$$

式中，设方括号中出现的弛豫矩阵元  $\Gamma_{12}$  和  $\Gamma_{23}$  大小相差甚微，有  $\gamma \approx \Gamma_{12} \approx \Gamma_{23}$ 。比例因子  $F$  反映分离系数  $S$  受入射光强  $E$  和分子结构参数的影响，定量关系为

$$F(A/I) = \frac{[E^4 \cdot f_{12} \cdot f_{23} / \Gamma_2 \cdot \Gamma_3]_A}{[E'^4 \cdot f'_{12} \cdot f'_{23} / \Gamma'_2 \cdot \Gamma'_3]_I} \quad (5-B)$$

### 2. 分子在单频行波场中的步进跃迁激励

分子能级间隔的非谐性用因子  $\delta$  表征，如图 2 所示。 $\delta = \omega_{12} - \omega_{23}$ 。当入射场为单频行波时 ( $\Omega_a = \Omega_b$ ,  $K_a = K_b$ )，能级跃迁  $e_2 \rightarrow e_3$  偏离共振态的失谐量等于  $\delta$ ，与式(4)相对应，我们得

$$\begin{aligned} \text{非谐性影响下分子A步进跃迁} & \begin{cases} |(\omega_{12})_A - \Omega_a| = 0 \\ |(\omega_{23})_A - \Omega_a| = \delta \end{cases} \\ \text{非谐性影响下同位素 I 步进跃迁} & \begin{cases} |(\omega_{12}) - \Omega_a| = \Delta \\ |(\omega_{23}) - \Omega_a| = \Delta - \delta \end{cases} \end{aligned} \quad (6)$$

采用与推导式(5)相同的步骤，得到激励方式 B 的分离系数计算公式为

$$S(A/I)_{\text{单,行,步进}} \approx G \cdot F \cdot [1 + (\Delta/\gamma)^2] \cdot \left[ 1 + \frac{\Delta^2 - 2 \cdot \Delta \cdot \delta}{\gamma^2 + \delta^2} \right] \quad (7)$$

比较式(5)和(7)，可注意到：当非谐因子  $\delta$  和同位素位移  $\Delta$  可相比拟时(例如， $\delta \approx \Delta/2$ )，激发方式 A 的分离系数  $S_{\text{双,行,步进}}$  近似与同位素位移  $\Delta$  的四次方成正比；而激发方式 B 的分离系数  $S_{\text{单,行,步进}}$  仅与  $\Delta^2$  成正比，且随  $\delta$  的递增而递减。分离系数的变化规律如图 3 曲线所示。由公式(5)和(7)求得的典型数例如下表所列：

分子同位素位移 $\Delta/\gamma$ (约化单位)	分子非谐性 $\delta/\gamma$ (约化单位)	同位素分离系数 *	
		$S_{\text{双,行,步进}}$	$S_{\text{单,行,步进}}$
3	1	~100	~15
2.5	1	~52	~4.5

图 3 数值曲线和以上数例一致表明：当分子体系和跃迁方式相同时，“双频法”的同位素分离系数大于(或远大于)“单频法”分离系数；与文献[2]报导的实验及理论计算基本相符。

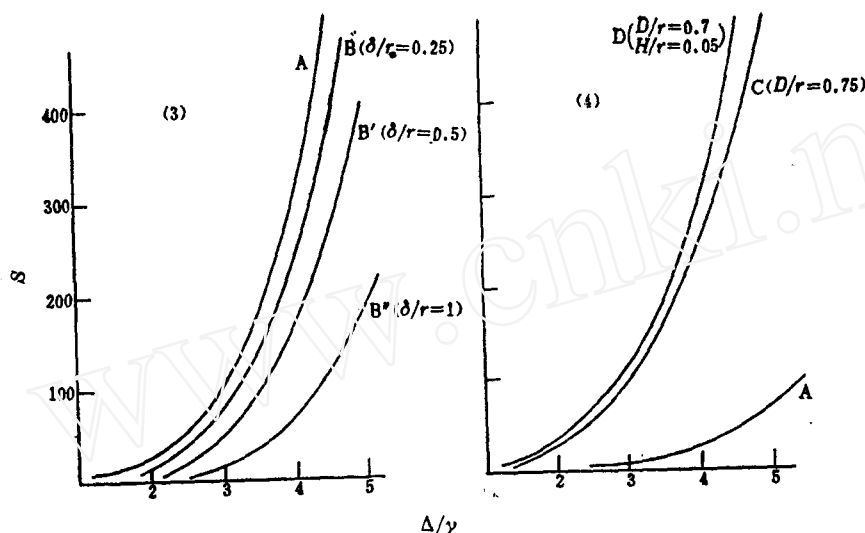


图 3, 图 4 分离系数  $S$  对参数  $\Delta$  和  $\delta$  (以及  $D$ ) 的依赖关系

曲线 A —— 双频行波步进跃迁激励;  
 曲线 B —— 单频行波步进跃迁激励;  
 曲线 C —— 单频驻波双光子跃迁激励;  
 曲线 D —— 近共振双光子跃迁激励。

图 4 纵坐标对照图 3 的再乘 10。

### 3. 分子在单频驻波场中的双光子跃迁激励

$$\text{激励方式} \begin{cases} \text{单频驻波条件: } \Omega_a = \Omega_b, \vec{K}_a = -\vec{K}_b, & (8) \\ \text{双光子共振条件: } H = \omega_{13} - (\Omega_a + \Omega_b) + (\vec{K}_a + \vec{K}_b) \cdot \vec{v} = 0 & (9) \end{cases}$$

将式(1-B), (8)和(9)代入(3)并化简, 得

$$S(A/I)_{\text{单, 驻, 双光子}} \approx G \cdot F \cdot [1 + (2 \cdot \Delta/\gamma)^2] \cdot \left[ 1 + \frac{2 \cdot \Delta}{D} + \frac{\Delta^2 + \gamma^2}{D^2} \right] \quad (10)$$

式中, 已令矢谱量  $D_a$  和  $D_b$  近似相等,  $D \approx D_a \approx D_b$ 。失谐量  $D_1$  定义为:  $D_a = |\omega_{12} - \Omega_a|$ ,  $D_b = |\omega_{23} - \Omega_b|$ 。

### 4. 反向行波激励下的近共振双光子跃迁

这种激励技术与激励方式(8)、(9)的不同点仅在于双光束频率相近但不完全相等, 即

$$\begin{aligned} \Omega_a > \Omega_b, \Omega_a - \Omega_b \approx 0 \\ \vec{K}_a / |\vec{K}_a| = -\vec{K}_b / |\vec{K}_b|, H \rightarrow 0 \end{aligned} \quad (11)$$

激励方式  $D$  的同位素分离系数为

$$S(A/I)_{\text{近共振, 双光子}} \approx G \cdot F \cdot [1 + (2 \cdot \Delta/\gamma)^2] \cdot \left[ 1 + \frac{2 \cdot \Delta}{(D-H)} + \frac{\Delta^2 + \gamma^2}{(D-H)^2} \right] \quad (12)$$

双光子跃迁具有“消多普勒加宽”的作用; 因此, 当分子同位素位移小到与多普勒线宽可比拟时, 激励方式  $C$  的分离系数仍可大于 1; 如图 4 所示, 在相同条件下, 曲线 A 迅速趋于 1。激发方式  $D$  有利于克服分子能级非谐性, 在一定条件下, 方式  $D$  比方式  $C$  的分离系数略高些; 例如, 当  $H/\gamma \approx 0$ ,  $\Delta/\gamma \approx 2$ ,  $D/\gamma \approx 0.75$  时,  $S_{\text{单, 驻, 双光子}} \approx 250$ ; 而当  $H/\gamma \approx 0.05$  时,  $S_{\text{近共振, 双光子}} \approx 280$ 。

### 参 考 文 献

- [1] Giacobino, E. and Cagnac, B., *Progress in optics XVII*, New York, 1980, pp. 98-100.  
[2] Лерохов, B. C., *Мур. С. Б., Sov. J. Quant. Electron.*, 8(3), 259(1976).  
[3] Koren, G. et al., *Appl. Phys. Lett.*, 41(5). 397(1982).

(编辑部收到日期: 1985年11月15日)

## CALCULATION OF SEPARATION FACTOR OF LASES ISOTOPIC ENRICHMENT BY MULTI-PHOTON EXCITATION OF MOLECULES

TAN JICHUN

(204 Section of laser, National University  
of Defense Technology, Changsha)

KUANG YIZHONG

(Laboratory of Laser, Sichuan University,  
Chendu)

### ABSTRACT

A Set of formulas for calculation of separation factor of laser isotopic enrichment are derived. The isotopic selectivity of several typical methods for multi-photon excitation of molecules is evaluated by comparing numerical examples with each other.

**Key words** Isotopic enrichment, multi-photon excitation, numerical method.