

О РАЗДЕЛЕНИИ ИЗОТОПОВ ЛАЗЕРНЫМ ИЗЛУЧЕНИЕМ ИНФРАКРАСНОГО ДИАПАЗОНА

*Э.М.Беленов, Е.П.Маркин, А.Н.Ораевский
В.И.Романенко*

Показано, что при стимулировании лазерным излучением химических реакций возможно эффективное разделение изотопов из смеси их газов. Физически эффект связан с разрывом колебательных температур в системе осцилляторов с различной энергией кванта при низкой поступательной температуре газа.

1. В данной работе мы обращаем внимание на возможность разделения изотопов при стимулировании химических реакций инфракрасным излучением [1].

В литературе имеются предложения [2,3] и эксперименты [4] по разделению изотопов в процессе химических реакций путем одновременного воздействия на реагент инфракрасным и ультрафиолетовым излучением. Выполнены эксперименты по разделению изотопов водорода инфракрасным лазерным излучением [5]. Однако, в случае, водорода различие колебательных частот изотопических модификаций молекул очень велико и селективное инициирование химической реакции не представляет трудностей. В случае атомов средних и больших масс различие в колебательных частотах изотопических модификаций

молекул сравнительно невелико. Казалось бы, в этом случае разделение изотопов путем селективного инициирования химической реакции не представляется возможным ввиду быстрого квазирезонансного обмена энергией между изотопическими модификациями молекул. Однако, как будет показано ниже, при использовании реакций с относительно большой энергией активации и значительном превышении колебательной температуры возбуждаемой моды молекулы над поступательной T различие в скоростях реакций изотопических модификаций молекул может быть весьма значительным. Физически этот эффект обусловлен резким отличием функций распределения по колебательным уровням при энергии, близкой к энергии активации \mathcal{E} реакции, что связано с особенностями механизма $v-v$ обмена при различных энергиях $\hbar\nu_i$ колебательных квантов молекул [6]. Тот факт, что вероятность передачи кванта от первого изотопа ко второму относится к обратному процессу как $\exp \hbar(\nu_1 - \nu_2)/kT$ приводит к отношению населенностей изотопов, пропорциональному величине $\exp 2\hbar(\nu_1 - \nu_2)\mathcal{E}/(\nu_1 + \nu_2)kT$ заметно отличающейся (при указанных выше условиях) от единицы.

2. Будем считать, что частота излучения лазера совпадает с частотой перехода $0 \rightarrow 1$ одного из изотопов смеси. В этом случае кинетические уравнения, описывающие изменение населенностей уровней молекул имеют вид

$$\frac{\partial n_i^{[k]}}{\partial t} = w\delta_{k1} \left[n_1^{[k]} - n_0^{[k]} \right] (\delta_{i0} - \delta_{i1}) + J_{i+1}^{[k]} - J_i^{[k]}, \quad k = 1, 2, \quad (1)$$

где δ_{i1} – символ Кронекера, $n_i^{[k]}$ – населенность i -го уровня k -го изотопа, w – вероятность перехода $0 \rightarrow 1$ под действием света, $J_i^{[k]}$ – поток частиц в пространстве чисел i , вызванный процессами колебательно-колебательной релаксации. В рамках модели гармонического осциллятора поток выражается следующим образом

$$J_i^{[k]} = i A^{(k)} \left[n_i^{(k)} - e^{-\theta^{(k)}} n_{i-1}^{(k)} \right]. \quad (2)$$

В случае одного изотопа $A = P_{10}^{01} (1 + \alpha) N$, где P_{10}^{01} – вероятность $v-v$ релаксации, а α – среднее число квантов, приходящихся на одну молекулу, $\theta = \ln[(1 + \alpha)/\alpha]$, а двух изотопов $\theta^{(k)}$ и $A^{(k)}$ определяются соотношениями

$$\exp \theta^{(1)} = \frac{P_{10}^{01} (\alpha^{(1)} + 1) N_1 + Q_{10}^{01} (1 + \alpha^{(2)}) N_2}{P_{01}^{10} \alpha^{(1)} N_1 + Q_{01}^{10} \alpha^{(1)} N_2}, \quad (3)$$

$$A^{(1)} = P_{10}^{01} (1 + \alpha^{(1)}) N_1 + Q_{10}^{01} (1 + \alpha^{(2)}) N_2, \quad (4)$$

где $\alpha^{(k)}$ – среднее число квантов в молекулах k -го сорта, N_k – их концентрация, Q_{10}^{01} – вероятность передачи кванта молекулой первого сорта, находящейся на первом колебательном уровне, молекуле второго сорта, находящейся на нулевом уровне. Величины $\theta^{(2)}$ и $A^{(2)}$ оп-

ределяются аналогичным образом. Величины Q_{10}^{01} и Q_{01}^{10} , P_{10}^{01} и P_{01}^{10} связаны принципом детального равновесия

$$Q_{10}^{01} = Q_{01}^{10} \exp(-\hbar(\nu_2 - \nu_1)/T); P_{10}^{01} = P_{01}^{10}, \quad (5)$$

где $\hbar\nu_k$ — энергия кванта k -го изотопа, T — поступательная температура.

При решении системы (1) будем, как обычно, считать, что молекулы, достигшие энергии \mathcal{E} активации реакции мгновенно вступают в реакцию. В этом случае отношение скоростей $y^{(k)} = -\frac{\partial N^{(k)}}{\partial t}/N^{(k)}$

реакции изотопов будет определяться соотношением

$$\frac{y^{(2)}}{y^{(1)}} = \kappa \exp(\theta^{(2)} - \theta^{(1)}) \mathcal{E}/\hbar\nu \quad (6)$$

где $2\hbar\nu = (\nu_1 + \nu_2)\sqrt{\hbar}$, а близкий к единице коэффициент $\kappa = A_2/A_1$. В случае $N_1 \gg N_2$ из (3) и (5) следует, сразу, что $\theta_2 - \theta_1 = (\hbar\nu_2 - \hbar\nu_1)/T$, так что (6) принимает вид

$$\frac{y^{(2)}}{y^{(1)}} \approx \exp \frac{\mathcal{E}}{T} \frac{(\nu_1 - \nu_2)}{\nu} \quad (7)$$

Нетрудно показать, что и при произвольном парциальном соотношении изотопов выражение (7) сохраняет вид. При малых T и больших энергиях активации различие в скоростях реакций особенно заметно.

В качестве примера рассмотрим следующий случай: $\mathcal{E} \approx 2 \text{ эв}$, $\hbar\nu \approx 0,1 \text{ эв}$ (излучение CO_2 -лазера), $T \approx 300^\circ\text{K}$, $(\nu_2 - \nu_1)/\nu = 1/40$ (различие в массах молекул изотопов $\Delta m/m \sim 1/20$). Тогда

$$y^{(2)} \approx 10 y^{(1)}. \quad (8)$$

Таким образом, данный пример иллюстрирует возможность эффективного разделения изотопов описанным методом.

Физический институт
им. П.Н.Лебедева
Академии наук СССР

Поступила в редакцию
6 июня 1973 г.

Литература

- [1] Н.Г.Басов, Э.М.Беленов, Е.П.Маркин, А.Н.Ораевский, А.В.Панкратов. ЖЭТФ, 64, 485, 1973.
- [2] R.V.Ambartzumian, V.S.Letokhov. IEEE J.Quant. Electr., QE-7, 305, 1971.
- [3] Н.В.Карлов, Ю.Б.Конев, А.М.Прохоров. Письма в ЖЭТФ, 14, 178, 1971.
- [4] Р.В.Амбарцумян, В.С.Летохов, Г.Н.Макаров, А.А.Пурецкий. Письма в ЖЭТФ, 17, 91, 1973.
- [5] S.W.Mayer, M.A.Kwock, R.W.F.Gross. Appl. Phys. Lett., 17, 516, 1970.
- [6] С.Е.Треанор, J.W.Rich, R.G.Rehm. J.Chem. Phys., 48, 1798, 1968.