

## СВЕТОИНДУЦИРОВАННЫЙ ДРЕЙФ И РАЗДЕЛЕНИЕ КОМПОНЕНТОВ СМЕСИ $^{13}\text{CH}_3\text{F} + ^{12}\text{CH}_3\text{F}$ В ПОЛЕ НЕПРЕРЫВНОГО ИК-ИЗЛУЧЕНИЯ

*В.Н. Панфилов, В.П. Струнин, П.Л. Чаповский,  
А.М. Шалагин*

Обнаружено явление светоиндуцированного дрейфа при воздействии непрерывного излучения  $\text{CO}_2$ -лазера на смесь изотопических молекул  $^{13}\text{CH}_3\text{F} + ^{12}\text{CH}_3\text{F}$ . Зарегистрирован изотопический эффект с коэффициентом разделения  $\approx 1,2$ . Впервые проведено количественное измерение относительного изменения транспортного сечения при колебательном возбуждении молекул, которое для  $\text{CH}_3\text{F}$  оказалось равным  $6 \cdot 10^{-3}$ .

В работе [1] теоретически предсказано явление светоиндуцированного дрейфа<sup>1)</sup> (СИД) частиц газа, резонансно поглощающих излучение и находящихся в смеси с буферным газом. Явление должно иметь широкие применения в физических задачах и в приложениях (например, для разделения изотопов) и потому требует детального исследования. Теория эффекта разработана достаточно полно [2 – 6], а экспериментальный материал чрезвычайно беден и представлен к настоящему времени всего двумя публикациями [7, 8]. В [7] на качественном уровне показано существование эффекта в парах Na, но количественные измерения не проводились из-за маскирующего влияния адсорбции. Второй эксперимент [8] проведен с молекулярным объектом ( $\text{SF}_6$ ). Здесь также выявились по крайней мере два обстоятельства, не позволяющие провести количественное сравнение с теорией. Первое – отсутствие эффекта в непрерывном режиме облучения. Второе – слишком малый изотопический эффект при большом эффекте в целом. По-видимому, причина несоответствий состоит в том, что при импульсном облучении возбуждаются более высокие колебательные состояния, но тогда и надежное теоретическое описание затруднено из-за сложности объекта.

Целью данной работы было выбрать максимально чистые условия эксперимента с тем, чтобы провести его на количественном уровне. В качестве объекта была выбрана молекула  $\text{CH}_3\text{F}$ , обладающая целым рядом достоинств с точки зрения поставленной задачи. Линия  $P(32)$  полосы  $9,6$  мкм излучения  $\text{CO}_2$ -лазера находится вблизи резонанса (со стороны больших частот) с изолированной линией  $R_0(4, 3)$  колебания  $\nu_3$  молекулы  $^{13}\text{CH}_3\text{F}$ . Отстройка от резонанса  $\Omega = 24$  МГц [9] составляет половину  $k\bar{\nu}$  – доплеровской полуширины. Коэффициент поглощения излучения на этой линии достаточно высок ( $0,3 \text{ см}^{-1}/\text{мм}$  рт. ст. [10]). На-

<sup>1)</sup>Мы будем пользоваться более удачным термином "дрейф", предложенным А.М. Дыхне, вместо термина "диффузия", использованного в [1].

конец, молекула  $\text{CH}_3\text{F}$  не является агрессивной и не адсорбируется на стенках.

Как следует из теории, эффект СИД увеличивается при увеличении скорости колебательной релаксации, а это можно обеспечить, используя в качестве буферного газа молекулы с близким колебательным квантом. Кроме того, резонансный обмен возбуждением с таким газом приводит к эффективному увеличению разности транспортных сечений [6]. Из этих соображений в качестве буферных мы выбрали изотопические молекулы  $^{12}\text{CH}_3\text{F}$ . Эксперименты проводились в непрерывном режиме, что гарантировало возбуждение только одного колебательного состояния.

Излучение  $\text{CO}_2$ -лазера (до 15 Вт в линии  $P(32)$  полосы 9,6 мкм) фокусировалось в медную трубку (внутренний диаметр 4 мм, длина 1 м) с хорошим заполнением поперечного сечения. На входном (для излучения) конце ячейки установлен порционный кран, отбирающий пробы для анализа состава газа на масс-спектрометре. Выходной конец трубки соединен с балластным объемом.

Эксперимент заключался в многократно повторяющемся сравнении по масс-спектрам установившихся отношений концентраций ( $N$  и  $N_B$ ) изотопических молекул  $^{13}\text{CH}_3\text{F}$  и  $^{12}\text{CH}_3\text{F}$  в условиях длительного (5 – 10 мин) облучения и без него. Обнаружено, что излучение  $\text{CO}_2$ -лазера существенно увеличивает относительную концентрацию молекул  $^{13}\text{CH}_3\text{F}$  на входном конце трубки. Коэффициент разделения  $\eta = K_{\text{осв}}/K$  ( $K_{\text{осв}}$ ,  $K$  – отношения концентраций  $N/N_B$  при облучении и без него) достигал в оптимальных условиях значения  $1,19 \pm 0,02$ . Подробное изучение этого явления свидетельствует о том, что мы имеем дело с СИД.

Мы предприняли ряд экспериментов, доказывающих отсутствие других причин изменения изотопического состава. В частности, проверено влияние лазерной термодиффузии [11]. Ее вклад определяется степенью возбуждения и градиентом температуры. Установлено, что в нашем случае дополнительное нагревание входного конца трубки либо ее середины на  $50 \div 60^\circ\text{C}$  приводит в обоих случаях к уменьшению  $\eta$  на 1 – 2%. Это качественно согласуется с СИД и не объясняется эффектом термодиффузии на продольных градиентах температуры. Далее, если излучение, прошедшее сквозь трубку, отразить и пропустить его в обратном направлении через нее, то  $\eta$  также уменьшается. Этого не происходило бы, если эффект обогащения был бы обусловлен просто возбуждением одного из компонентов смеси. С другой стороны, уменьшение  $\eta$  при добавлении встречного излучения как раз характерно для СИД, чувствительного к направлению волнового вектора.

Результаты измерения  $\eta$  в различных условиях приведены в таблице.  $P$  (мм рт.ст.) – полное давление смеси,  $\Delta S$  ( $\text{Вт}/\text{см}^2$ ) – изменение плотности потока энергии при прохождении ячейки. Точность измерения  $\eta$  составляет 2%.

Предварительные измерения времени установления стационарных концентраций показали, что оно составляет около 15 секунд и примерно совпадает со временем диффузионного выравнивания.

$K$	$P$	$\Delta S$	$\eta$
0,53	0,26	34	1,11
0,25	0,23	20,6	1,11
0,25	0,68	68,7	1,15
0,25	0,24	14	1,12
0,25	0,24	18	1,12
0,25	0,68	73	1,19
0,067	0,7	38	1,17

В наших условиях теоретическое соотношение, определяющее изменение концентрации  $\Delta N$  поглощающего компонента по длине ячейки, имеет вид

$$\Delta N = \frac{\nu_m - \nu_n}{\nu_n} \frac{2 \Delta S}{\hbar \omega \bar{v}} \frac{\Omega}{k \bar{v}}, \quad (1)$$

Где  $\nu_n, \nu_m$  — газокинетические частоты столкновений в основном и возбужденном колебательных состояниях,  $\Delta N$  связано с коэффициентом разделения выражением

$$\Delta N = N \frac{\eta - 1}{1 + K_{\text{осв}}}. \quad (2)$$

В формулах (1) и (2) все величины либо известны, либо измерялись в эксперименте, за исключением фактора  $(\nu_m - \nu_n)/\nu_n$ , который при условии  $N \ll N_B$  определяется только природой взаимодействия изотопических молекул. Его значение, найденное по формулам (1), (2) и совокупности всех измерений, оказывается равным  $(5,7 \pm 1) \cdot 10^{-3}$ . Здесь приведена только случайная ошибка измерений. Ее малая величина указывает на хорошее совпадение результатов эксперимента с теорией.

$\Delta N$  согласно (1) линейно зависит от  $\Delta S$ , что подтверждается и результатами эксперимента. Такая зависимость остается справедливой до тех пор, пока полевое уширение не сравнится с доплеровским, Этому соот-

ветствуют плотности потока энергии  $\sim 10^5$  Вт/см<sup>2</sup>. Следовательно, эффект СИД, полученный в данном эксперименте, может быть увеличен на  $3 \div 4$  порядка.

В заключение отметим, что полученные в данной работе результаты могут служить основой нового метода разделения изотопов [1, 6]. Этот метод радикально отличается от всех других лазерных методов тем, что столкновения с обменом возбуждения между изотопическими компонентами не препятствуют эффекту, а напротив, обуславливают его.

Авторы благодарят С.Г.Раутиана за полезные обсуждения результатов работы.

Институт автоматики и электрометрии  
Академии наук СССР  
Сибирское отделение

Институт химической кинетики и горения  
Академии наук СССР  
Сибирское отделение

Поступила в редакцию  
2 декабря 1980 г.

### Литература

- [1] Ф.Х.Гельмуханов, А.М.Шалагин. Письма в ЖЭТФ, **29**, 773, 1979.
- [2] Ф.Х.Гельмуханов, А.М.Шалагин. ЖЭТФ, **78**, 1672, 1980.
- [3] Ф.Х.Гельмуханов, А.М.Шалагин. Препринт ИАиЭ СО АН СССР, №133, 1980.
- [4] Ф.Х.Гельмуханов, А.М.Шалагин. Автометрия, №3, 103, 1980.
- [5] А.М.Дыхне, А.Н.Старостин. ЖЭТФ, **79**, 1211, 1980.
- [6] Ф.Х.Гельмуханов, Г.Г.Телегин. Препринт ИАиЭ СО АН СССР, №140, 1980; ЖЭТФ, **81**, вып.3, 1981.
- [7] В.Д.Анцыгин, С.Н.Атутов, Ф.Х.Гельмуханов, Г.Г.Телегин, А.М.Шалагин. Письма в ЖЭТФ, **30**, 262, 1979.
- [8] В.Ю.Баранов, Е.П.Велихов, А.М.Дыхне, С.А.Казаков, В.С.Межевов, М.Ю.Орлов, В.Д.Письменный, А.И.Стародубцев, А.Н.Старостин. Письма в ЖЭТФ, **31**, 475, 1980.
- [9] Е.Н.Чесноков, В.Н.Панфилов. ЖЭТФ, **73**, 2122, 1977.
- [10] T.-Y.Chang, C.-H.Wang, P.-K.Cheo. Appl. Phys. Lett., **15**, 157, 1969.
- [11] Н.В.Карлов, Ю.Н.Петров, И.В.Федоров. Труды ФИАН, **114**, 174, 1979; Н.В.Карлов, Ю.Н.Петров, А.М.Прохоров, И.В. Федоров. ЖТФ, **48**, 2334, 1978.