



## بهره‌گیری از تپ‌های لیزر $\text{NH}_3$ در فرایند گسست چند فوتونی مولکول‌های $\text{CCl}_4$ همراه با گزینندگی ایزوتوپ $^{13}\text{C}$

کاوه سیلاخوری<sup>۱\*</sup>، محمدعلی حداد<sup>۱</sup>، عباس بهجت<sup>۱</sup>، محمد طالبی<sup>۱</sup>، سیدمحمد رضا صدرقائنی<sup>۱</sup>، قاسم عزیزآبادی<sup>۱</sup>  
۱- پژوهشکده لیزر و اپتیک، پژوهشگاه علوم و فنون هسته‌ای، سازمان انرژی اتمی ایران، صندوق پستی: ۸۴۸۶-۱۱۳۶۵، تهران-ایران  
۲- دانشکده فیزیک، دانشگاه یزد، صندوق پستی: ۷۴۱-۸۹۱۷۸، یزد-ایران

**چکیده:** در این پژوهش، برای نخستین بار در ایران جداسازی لیزری مولکولی ایزوتوپ  $^{13}\text{C}$  به انجام رسیده است. برای این کار، یک لیزر  $\text{NH}_3$  با دمش لیزر  $\text{TEA CO}_2$  طراحی و راه‌اندازی شد که دارای یک خروجی تپی با انرژی ۳۵۰ تا ۴۰۰ mJ و پهنای زمانی ۱۰۰ ns در طول موج ۱۲٫۸۱۲  $\mu\text{m}$  بوده است. تپ‌های این لیزر در یک اتاقک پرتودهی محتوی بخار  $\text{CCl}_4$  در فشارهای ۰٫۱ تا ۱ mbar کانونی شدند و رخداد فرایند تفکیک چند فوتونی با گزینندگی بیشینه‌ی برابر  $S=4$  برای گونه‌ی مولکولی  $^{13}\text{CCl}_4$  به انجام رسید. ضریب جداسازی بیشینه‌ی به دست آمده در این رشته از آزمایش‌ها برابر  $\beta=7$  بوده است.

**واژه‌های کلیدی:** جداسازی ایزوتوپ  $^{13}\text{C}$ ، جداسازی ایزوتوپی لیزری، لیزر آمونیاک با دمش نوری، طیف‌نمایی لیزری

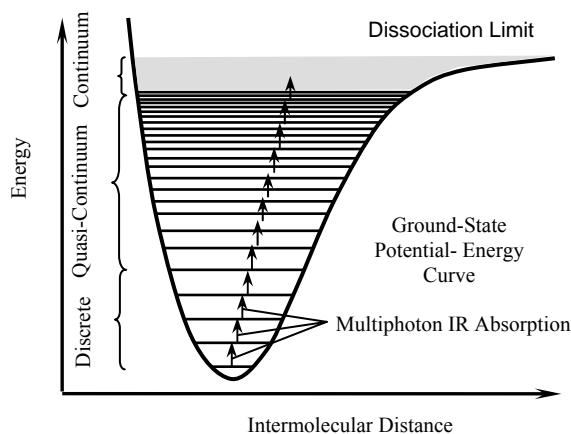
## Utilizing $\text{NH}_3$ Laser Pulses in Multiphoton Dissociation Process of $\text{CCl}_4$ Molecules with $^{13}\text{C}$ Isotope Selectivity

K. Silakhori<sup>1\*</sup>, M.A. Hadad<sup>2</sup>, A. Behjat<sup>2</sup>, M. Talebi<sup>1</sup>, S.M.R. Sadre Ghaeni<sup>1</sup>, G. Aziz Abadi<sup>1</sup>  
1- Nuclear Fuel Cycle Research School, Nuclear Science and Technology Research Institute, AEOL, P.O. Box: 11365-8486, Tehran-Iran  
2- Department of Physics, P.O.Box: 89178-741, Yazd - Iran

**Abstract:** In this paper performance of  $^{13}\text{C}$  molecular laser isotope separation is reported. For this purpose, a TEA  $\text{CO}_2$  laser pumped  $\text{NH}_3$  laser was constructed which provides output energies of 350-400mJ with a pulse duration of 100 ns at 12.812 $\mu\text{m}$  wavelength. The laser pulses were focused into an irradiation cell containing 0.1-1 mbar  $\text{CCl}_4$  gas pressure. Under the multiphoton dissociation condition of  $^{12}\text{CCl}_4$ , a maximum selectivity of  $S=4$  and separation factor of  $\beta=7$  was obtained.

**Keywords:**  $^{13}\text{C}$  Isotope Separation, Laser Isotopic Separation, Optically Pumped  $\text{NH}_3$  Laser, Laser Spectroscopy

## ۱- مقدمه



شکل ۱- ترازهای انرژی مولکول‌های چند اتمی با پتانسیل درون مولکولی ناهم‌آهنگ.

آزمایش‌ها نشان داده‌اند که مولکول‌های چند اتمی می‌توانند در برخورد با تپ‌های لیزر پرتوان و تک‌فام کوچک شده با ترازهای ارتعاشی-چرخشی پایه‌ی یکی از مدهای ارتعاشی خود، که دارای چگالی سطحی انرژی از مرتبه‌ی چند  $J/cm^2$  نیز باشند، در یک فرایند ناگهانی و آستانه‌ای با جذب چند فوتون فرودی همسان، از ترازهای ارتعاشی گسسته‌ی نخستین خود بالا روند و با جذب ده‌ها فوتون دیگر در گستره‌ی نیمه-پیوستار و پیوستار، در یک یا چند پیوند شیمیایی سست‌تر خود دچار گسست مولکولی گردند. با رویکرد به پی‌آمدهایی که ناهمسانی‌های ایزوتوپی در ویژگی‌های طیفی مولکول‌هایی با ساختارهای شیمیایی یکسان پدید می‌آورند، مانند جابه‌جایی بسامد مرکزی جذب وابسته به مدهای ارتعاشی، فرایند پرتوده‌ی لیزری می‌تواند به گونه‌ای پی‌ریزی گردد که در آن، با کوچک نمودن بسامد پرتوهای فرودی برای قله‌ی جذب تنها یک گونه‌ی ایزوتوپی، فرایندهای جذب و تفکیک چند فوتونی با گزینندگی ایزوتوپی نیز همراه باشند. سرانجام، از دگرگونی‌های شیمیایی ایزوتوپ-گزینی که در ساختار مولکول‌های تفکیک شده روی داده‌اند، می‌توان برای جداسازی ایزوتوپ‌های دلخواه به روش‌های شیمیایی شناخته شده، سود جست.

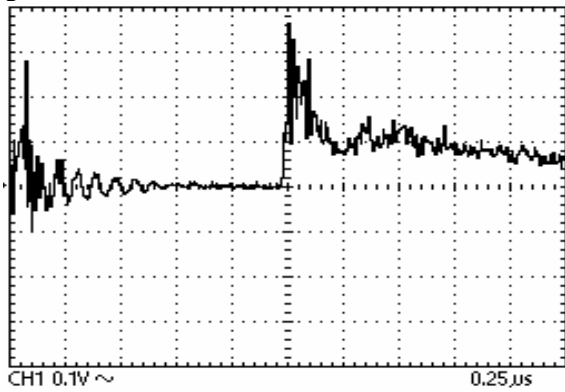
شناخت و بررسی درست پایه‌های نظری فرایند جذب و گسست چند فوتونی در مولکول‌های چند اتمی، نیازمند بهره‌گیری از شگردهایی هم‌چون نظریه‌ی اختلال [۲۰]، حل مستقیم معادله‌ی وابسته به زمان شرویدینگر [۲۱]، الگوهای آماری [۲۲] و مانند این‌ها است، که با همه‌ی برتری‌ها و کاستی‌های خود، زمینه‌ساز پی‌گیری و کوشش‌های بسیار پژوهش‌گران در رشته‌ی اپتیک غیرخطی بوده‌اند.

با شناخته شدن پدیده‌های ایزوتوپ-گزین<sup>(۱)</sup> لیزری مانند جذب چند فوتونی<sup>(۲)</sup> و تفکیک چند فوتونی<sup>(۳)</sup> مولکول‌های چند اتمی در سال‌های میانی دهه‌ی ۱۹۷۰، جداسازی بسیاری از ایزوتوپ‌های سبک و سنگین از H گرفته تا U به کمک چنین روش‌هایی به انجام رسیده است [۱ تا ۶]. اگرچه انگیزه‌ی بنیادی بیش‌تر این پیگیری‌ها زمینه‌های پژوهشی و طیف‌نمایی لیزری بوده است، ولی یافته‌ها به گونه‌ای بوده‌اند که گاه چشم‌اندازهای روشنی در راستای فراوری انبوه برخی از ایزوتوپ‌ها را نیز به ارمان آورده‌اند. ایزوتوپ  $^{13}C$ ، که به جز  $^{12}C$  تنها ایزوتوپ پایدار اتم کربن با فراوانی ۱/۱۱٪ است را، بی‌گمان باید یکی از همین دسته به شمار آورد که نه تنها فراوری انبوه آن از راه تفکیک چند فوتونی در مولکول  $CF_3HCl$  با کامیابی همراه بوده، که جداسازی آن بر پایه‌ی انگیزه‌های پژوهشی طیف‌نمایی در ده‌ها مولکول دیگر هم‌چون  $CF_3Br$ ،  $CF_3I$ ،  $CF_3Cl_2$ ،  $CH_3OH$ ،  $CCl_4$  و مانند آن‌ها نیز بررسی شده است [۶ تا ۱۲]. در این میان، کم‌ترین پیگیری‌ها از آن  $CCl_4$  بوده که با همه‌ی زیبایی‌های کاری، به علت دشواری‌های پیچیده‌ای هم‌چون خوردگی و واکنش‌پذیری بسیار بالای این مولکول، به ویژه نیاز بنیادی به لیزر  $NH_3$  دمش لیزر  $CO_2$ ، TEA، تاکنون تنها یک گروه از پژوهشگران روسی کار بر روی آن را گزارش نموده‌اند [۱۳ تا ۱۶]. این نوشته، گزارشی از یک پژوهش همانند است.

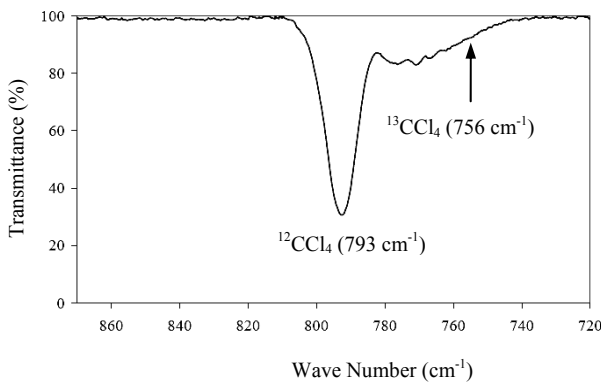
## ۲- پایه‌های فیزیکی

با پیدایش لیزرها، بررسی برهم‌کنش پرتوهای هم‌دوس با ساختارهای اتمی و مولکولی دست‌آوردهای علمی و عملی چشمگیری را به دنبال داشته است که از آن میان، پدیده‌ی جذب و گسست چند فوتونی را باید یکی از شگفت‌انگیزترین آن‌ها در زمینه‌ی اپتیک غیرخطی به‌شمار آورد.

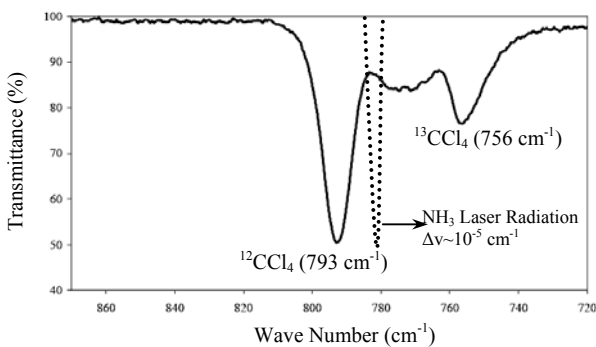
آن‌چه که شالوده‌ی رخداد چنین پدیده‌هایی در مولکول‌های چند اتمی به‌شمار می‌رود، و در گزارش‌های پیشین به آن پرداخته شده است [۱۷، ۱۸، ۱۹]، دور شدن روند پتانسیل درون مولکولی از رفتار پتانسیل نوسانگر هماهنگ ساده است. پی‌آمد این ناهم‌آهنگی<sup>(۴)</sup>، هم‌چنان که در شکل ۱ دیده می‌شود، به گونه‌ای است که گاف انرژی میان ترازهای ارتعاشی در هر تراز الکترونی، به جز نخستین چند تراز گسسته‌انگشت شمار، با افزایش عدد کوانتومی ارتعاشی رفته‌رفته کاهش می‌یابد؛ تا آن‌که به زودی این ترازها ساختاری نیمه-پیوستار<sup>(۵)</sup>، سپس پیوستار<sup>(۶)</sup> می‌یابند.



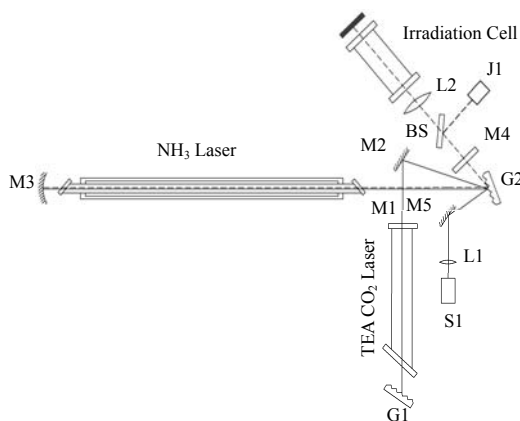
شکل ۲- تحول تپ‌های لیزر NH<sub>3</sub> به کار رفته.



شکل ۳- طیف جذبی IR نمونه‌ی طبیعی بخار CCl<sub>4</sub>.



شکل ۴- طیف جذبی IR نمونه‌ی CCl<sub>4</sub> با فراوانی ۳۰ درصد <sup>13</sup>CCl<sub>4</sub> و جایگاه بسامدی پرتوهای گسیلی لیزر NH<sub>3</sub>.



شکل ۵- آرایش پرتودهی به کار گرفته شده.

### ۳- روند انجام آزمایش‌ها

فرایند پرتودهی در این آزمایش‌ها، با تپ‌های لیزر NH<sub>3</sub> با دمش لیزر TEA CO<sub>2</sub>، که در گزارش‌های پیشین مورد بررسی قرار گرفته است [۲۳ و ۲۴]، انجام شد. این لیزر، در طول موج ۱۲/۸۱۲ μm، که به کمک تک‌فام ساز GCA/McPHERSON, 216.5 اندازه‌گیری شده، تپ‌هایی با انرژی ۳۵۰ تا ۴۰۰ mJ، پهنای زمانی ۱۰۰ ns و دنباله‌ی ۴ μs گسیل می‌نماید. شکل ۲، تحول زمانی این تپ‌ها را که به کمک فوتون دراگ گرفته شده، نشان می‌دهد.

طیف IR بخار CCl<sub>4</sub> طبیعی که با طیف‌نمای دو باریکه‌ای TJ 270-30 با دقت ۰/۲ cm<sup>-1</sup> گرفته شده، در شکل ۳ آورده شده است.

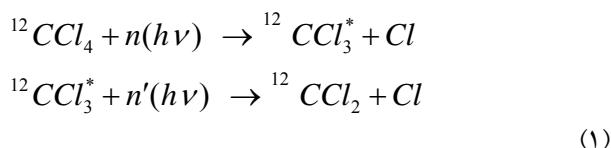
ناگفته پیداست که نمی‌توان قله‌ی جذب وابسته به گونه‌ی ایزوتوپی <sup>13</sup>C با فراوانی ناچیز ۱/۱٪ را، در طیف IR نمونه‌ی طبیعی بخار CCl<sub>4</sub> آشکار نمود و این کار، تنها با بهره‌گیری از طیف‌نماهای جرمی شدنی خواهد بود. به علت در دسترس نبودن چنین دستگاهی با ویژگی‌های دلخواه، ناگزیر نمونه‌ای از <sup>13</sup>CCl<sub>4</sub> با فراوانی ۹۹٪ فراهم گردید و با آمیختن آن با نمونه‌ی طبیعی CCl<sub>4</sub>، آمیزه‌ای با فراوانی ۳۰٪ از <sup>13</sup>CCl<sub>4</sub> به دست آمد، که دارای یک طیف جذبی IR با قله‌های آشکارپذیر و تا اندازه‌ای نزدیک به هم از <sup>12</sup>CCl<sub>4</sub> و <sup>13</sup>CCl<sub>4</sub> بود. از آن‌جا که هدف این پژوهش تنها نشان دادن امکان انجام آزمایشی این فرایند بوده است، این شگرد می‌توانست راهکاری شایسته به شمار آید. لازم به یادآوری است که تنها گروه پژوهشی یاد شده در روسیه نیز، از شیوه‌ی همانندی بهره گرفته بودند [۱۵ و ۱۶].

طیف جذبی IR این نمونه، به همراه جایگاه بسامدی پرتوهای گسیلی لیزر NH<sub>3</sub> در شکل ۴ نشان داده شده است.

همان‌گونه که دیده می‌شود، قله‌های جذب دو گونه‌ی ایزوتوپی از یک جابه‌جایی ایزوتوپی Δν=۳۷ cm<sup>-1</sup> برخورداراند و بسامد پرتو لیزر نیز در میان آن‌ها و نزدیک‌تر به قله‌ی <sup>13</sup>CCl<sub>4</sub> جای گرفته است. از آن‌جا که در برهم‌کنش با تپ‌های لیزری کانونی شده، قله‌ی طیف گسست چند فوتونی مولکول‌های چند اتمی با یک جابه‌جایی سرخ از قله‌ی طیف جذبی تک فوتونی آن‌ها به سوی طول موج‌های بلندتر کشیده می‌شود [۲۵]، روی هم رفته باید چشم به راه گسست چشمگیرتری در گونه‌ی <sup>13</sup>CCl<sub>4</sub> در برابر گونه‌ی دیگر بود. شکل ۵، آرایش به کار گرفته شده برای پرتودهی آمیزه‌ی گازی را نشان می‌دهد.

**۴- یافته‌ها**

فرایند تفکیک چند فوتونی مولکول  $CCl_4$  از روند زیر پیروی می‌نماید



که به پیدایش گسست پاره‌های  $CCl_3^{(v)}$  و  $CCl_2$  با نوارهای جذب در بازه‌ی IR می‌انجامد. طیف‌های IR آمیزه‌ی گازی  $CCl_4$  با فشار آغازین ۱mbar پس از هر گام پرتودهی ۱۵۰۰ تای، در شکل ۶ آورده شده‌اند.

همان‌گونه که در شکل ۶ دیده می‌شود، با افزایش شمار تپ‌های لیزری فرودی، دامنه‌ی قله‌ی جذب گونه‌ی  ${}^{12}CCl_4$  با آهنگ بیش‌تری نسبت به  ${}^{13}CCl_4$  رو به کاهش می‌گذارد که این خود، نشان‌دهنده‌ی کاهش تندتر فراوانی این گونه‌ی مولکولی است. از سوی دیگر، افزایش فراوانی تفکیک پاره‌ها همراه با افزایش دامنه‌ی قله‌های جذب وابسته در بازه‌ی ۸۲۰ تا  $860\text{ cm}^{-1}$  به خوبی در شکل آشکار است.

اگر  $P_N$  و  $P_0$  فشارهای جزئی آغازین و پس از تابش N تپ لیزری هر یک از گونه‌های ایزوتوپی باشند، داریم [۱۸ و ۲۶]

$$\frac{P_N}{P_0} = \exp\left[-\ln\left(\frac{1}{1-\Gamma w} \cdot N\right)\right] \quad (2)$$

که در آن،  $\Gamma = \frac{V_d}{V_c} = 0.03$  نسبت حجم واکنش به حجم اتاقک پرتودهی و  $w$  نیز آهنگ تفکیک و برابر با کسر مولکول‌های تفکیک شده در حجم واکنش با تابش هر تپ لیزری است. از آن‌جا که در این آزمایش‌ها همواره  $\Gamma w \ll 1$  است، رابطه‌ی بالا را می‌توان به شکل زیر ساده‌سازی نمود

$$\frac{P_N}{P_0} = \exp(-\Gamma w \cdot N) \quad (3)$$

روند تغییرات نسبت  $\frac{P_N}{P_0}$  برای هر یک از گونه‌های ایزوتوپی پس از N تپ لیزری، برای آمیزه‌هایی با فشارهای آغازین مختلف، همراه با برازش نمایی آن‌ها در شکل ۷ نشان داده شده است.

پراش مرتبه‌ی اول تپ‌های خط  ${}^9R(16)$  لیزر  $TEA\ CO_2$  از توری  $G2(100\text{ s/mm})$  با انرژی ۳J، به کمک آینه‌ی تخت  $M2$  به درون کاواک شیشه‌ای لیزر  $NH_3$  به درازای ۳m و قطر ۳cm با دو پنجره‌ی پروستر NaCl فرستاده می‌شود. پراش مرتبه‌ی صفر این تپ‌ها نیز، از راه آینه‌ی  $M5$  و عدسی  $L1$  برای پایش خط گسیلی لیزر به طیف‌نما لیزری  $S1$  فرستاده می‌شود. بازآواگر لیزر  $NH_3$ ، آینه‌ی کاواک  $M3$  به شعاع انحنای ۱۰m و تیغه‌ی  $ZnSe$  تخت  $M4$  با تراگسیل ۶۰٪ را دربرمی‌گیرد، که از راه پراش مرتبه‌ی اول  $G2$  با هم جفت شده‌اند. بخشی از تپ‌های لیزر  $NH_3$  به کمک باریکه‌ی شکاف BS برای اندازه‌گیری انرژی به ژول‌سنج J فرستاده می‌شود و بخش دیگر آن با انرژی  $250\text{ mJ}$  به کمک عدسی  $L2$  به فاصله‌ی کانونی ۱۰cm در درون اتاقک پرتودهی ساخته شده از استوانه‌ی پیرکس به درازای ۱۲cm و قطر ۱/۸cm و با دو پنجره‌ی اپتیکی عمودی NaCl کانونی می‌شود. بدین‌سان، چگالی سطحی انرژی در لکه‌ی کانونی به  $7\text{ J/cm}^2$  می‌رسد که با توجه به پهنای زمانی ۱۰۰ns تپ‌ها، هم‌ارز با چگالی سطحی توان  $70\text{ MW/cm}^2$  است. از آن‌جا که چگالی انرژی آستانه‌ی تفکیک چند فوتونی برای این مولکول برابر  $2\text{ J/cm}^2$  گزارش شده [۱۶]، حجم برهم‌کنش را می‌توان چیزی در حدود  $0.78\text{ cm}^3$  برآورد نمود.

گذشته از دردهای وابسته به خوردگی بی‌اندازه بالای بخار  $CCl_4$ ، از یک سو فشارسنج‌های مکانیکی، که به جنس گاز بستگی ندارند، از دقت خوبی در فشارهای کم‌تر از ۱mbar برخوردار نیستند و از سوی دیگر، فشارسنج‌های ترموکوپلی رفتاری پیچیده و غیرخطی در برابر این بخار از خود نشان می‌دهند. برای دستیابی به روشی که از درستی و کارآیی شایانی در این زمینه برخوردار باشد، یک روش طیف‌نمایی ویژه در پیش گرفته شد که در آن، نمونه‌هایی از آمیزه‌های ایزوتوپی گوناگون بخارهای  ${}^{12}CCl_4$  و  ${}^{13}CCl_4$  در اتاقک پرتودهی با فشارهای بالاتر از ۱mbar، که از دقت اندازه‌گیری خوبی با فشارسنج‌های مکانیکی برخورداراند، طیف‌نمایی شدند و هم‌زمان، قله‌های جذب طیف IR آن‌ها نیز اندازه‌گیری گردید. آن‌گاه، با برون‌یابی نمودار برازش به دست آمده در فشارهای کم‌تر از ۱mbar، اندازه‌گیری فشار وابسته به هر طیف به دست آمده از نمونه‌ها تا فشارهای  $10^{-2}\text{ mbar}$  دسترس پذیر گردید [۱۹].



**جدول ۱** - مقادیر به دست آمده برای S و W از نمودارهای برازش آمیزه‌های گازی با فشارهای آغازین مختلف.

P (mbar)	S	W	
		<sup>13</sup> CCl <sub>4</sub>	<sup>12</sup> CCl <sub>4</sub>
۱	۲٫۳	۳۳٫۳×۱۰ <sup>-۴</sup>	۶۶٫۶×۱۰ <sup>-۴</sup>
۰٫۵	۲٫۵	۴۳٫۳×۱۰ <sup>-۴</sup>	۱۰۰×۱۰ <sup>-۴</sup>
۰٫۱	۴	۶۶٫۶×۱۰ <sup>-۴</sup>	۲۸۰×۱۰ <sup>-۴</sup>

از سوی دیگر، اگر [CCl<sub>4</sub>]<sup>i</sup> فراوانی گونه‌ی ایزوتوپی i پس از N تپ لیزری باشد، ضریب جداسازی فرایند برابر خواهد بود با

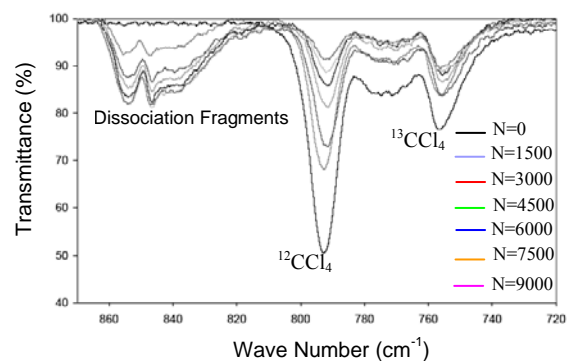
$$\beta = \frac{[^{13}\text{CCl}_4]_0 / [^{12}\text{CCl}_4]_0}{[^{13}\text{CCl}_4]_N / [^{12}\text{CCl}_4]_N} \quad (۴)$$

که بر پایه‌ی رابطه‌ی (۳) می‌توان آن را به صورت زیر بازنویسی نمود [۱۸ و ۲۶]

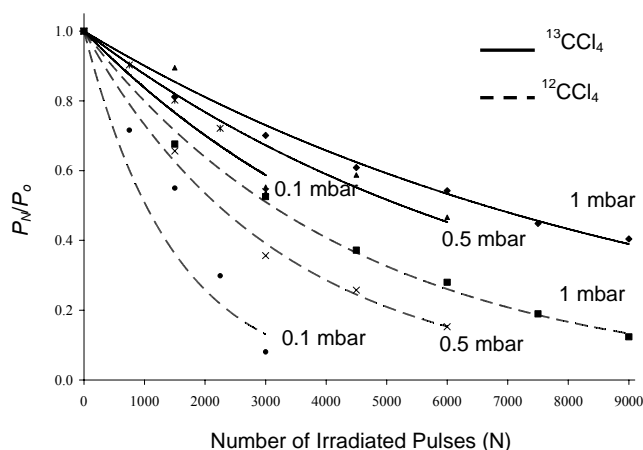
$$\beta = \exp[\Gamma(w_{12} - w_{13})N] \quad (۵)$$

تغییرات  $\beta$  برحسب N برای آمیزه‌هایی از گاز CCl<sub>4</sub> با سه فشار آغازین مختلف در شکل ۸ نشان داده شده است. افزایش نمایی ضریب جداسازی و هم خوانی آن با پیش‌بینی نظری به روشنی آشکار است. دیده می‌شود که اندازه‌ی ضریب جداسازی برای ۳۰۰۰ تپ لیزری در آمیزه‌ای با فشار آغازین ۰٫۱ mbar به  $\beta=7$  می‌رسد، که هم‌ارز با افزایش فراوانی گونه‌ی ایزوتوپی <sup>13</sup>CCl<sub>4</sub> از حدود ۳۰٪ به ۶۰٪ در گاز برجامانده (پسماند) است.

در همین راستا، پی‌آمد اضافه کردن دو گاز تک اتمی Ar و دو اتمی H<sub>2</sub>، به عنوان گازهای کمکی یا جاروبگر<sup>(۸)</sup> بررسی شد. برای این کار، آمیزه‌های ۱:۱ از Ar:CCl<sub>4</sub> و H<sub>2</sub>:CCl<sub>4</sub> در اتاقک پرتودهی با ۳۰۰۰ تپ لیزری تابش دهی شدند. این یافته‌ها، در کنار داده‌های وابسته به آمیزه‌ی CCl<sub>4</sub> خالص در جدول ۲ فهرست شده‌اند.



**شکل ۶** - دگرگونی طیف جذبی آمیزه‌ی گازی در گام‌های مختلف پرتودهی.



**شکل ۷** - روند تغییر نسبت فشار گونه‌های ایزوتوپی به فشارهای آغازین آن‌ها پس از تابش N تپ لیزری.

در شکل ۷ دیده می‌شود که برای هر سه آمیزه، رفتار کاهش  $\frac{P_N}{P_0}$  با شمار تپ‌های لیزری، از هم‌خوانی خوبی با معادله‌ی نمایی ۳ برخوردار است. افزون بر این، می‌توان دید که اگر چه با کم شدن فشار آغازین آمیزه‌ها، آهنگ افت فشار برای هر دو گونه‌ی ایزوتوپی بیش‌تر می‌شود، این افزایش آهنگ افت فشار برای گونه‌ی <sup>12</sup>CCl<sub>4</sub> بزرگ‌تر از گونه‌ی <sup>13</sup>CCl<sub>4</sub> است. این رفتار را می‌توان نشانه‌ای از گزینندگی فرایند گسست چند فوتونی،  $S = \frac{w_{12}}{w_{13}}$ ، به شمار آورد که در آن،  $w_{12}$  و  $w_{13}$  به ترتیب آهنگ تفکیک گونه‌های ایزوتوپی <sup>12</sup>CCl<sub>4</sub> و <sup>13</sup>CCl<sub>4</sub> هستند. اندازه‌های W و S به دست آمده از نمودارهای برازش برای آمیزه‌های با فشار گوناگون در جدول ۱ آورده شده‌اند. افزایش W و S برای آمیزه‌های با فشار نخستین کم‌تر، به درستی نشان از کارکرد ویرانگر واهلش‌های برخوردی V-V و T-V در میان گونه‌های ایزوتوپی مولکولی برانگیخته‌ی <sup>13</sup>CCl<sub>4</sub> با دیگر گونه‌های ایزوتوپی در فشارهای بالاتر دارد.



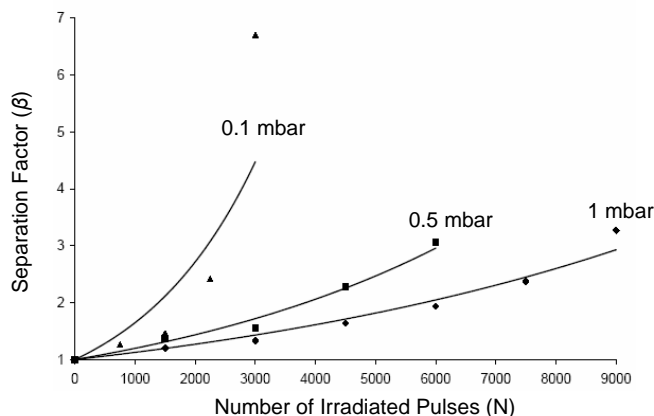
لیزر  $NH_3$  به انجام رسید و شماری از پارامترهای گسست، هم چون ضریب جداسازی و گزینندگی بر پایه‌ی شمار تپ‌های فرودی لیزری و فشارهای آغازین گوناگون آمیزه بررسی شدند. افزودن گازهای کمکی  $Ar$  و  $H_2$  با نسبت‌های یکسان به آمیزه‌ی گازی نیز، در افزایش ضریب جداسازی کارگر بوده است، تا جایی که در پایان، فراوانی گونه‌ی ایزوتوپی کم‌یاب  $^{13}CCl_4$  به بیش از دو برابر اندازه‌ی نخستین خود رسانده شد.

### تشکر و قدردانی

از خانم دکتر فلورا حشمت‌پور و آقای دکتر سیف‌اله جلیلی برای رایزنی‌های بسیار سودمندشان و آقای مهندس بهنام پورعمادی برای کمک‌های فنی بی‌دریغشان سپاسگزار می‌گردم.

### پی‌نوشت‌ها:

- ۱- Isotope Selective
- ۲- Multi Photon Absorption
- ۳- Multi Photon Dissociation
- ۴- Unharmonicity
- ۵- Quasi Continuum
- ۶- Continuum
- ۷- Dissociation Fragments
- ۸- Scavenger



شکل ۸- تغییرات  $\beta$  در برابر  $N$  برای آمیزه‌هایی از گاز  $CCl_4$  با سه فشار نخستین گوناگون.

جدول ۲- ضریب جداسازی به دست آمده در فرایند گسست آمیزه‌ای با و بدون گاز کمکی.

فشار $CCl_4$ (mbar)	$\beta$		
	$CCl_4$	$CCl_4+Ar$	$CCl_4+H_2$
۱	۱٫۲	۱٫۱۲	۱٫۲
۰٫۵	۱٫۴	۱٫۶	۱٫۱۴
۰٫۱	۱٫۵	۴٫۲	۲٫۲

در این داده‌ها، کارآیی گاز تک اتمی  $Ar$  در افزایش ضریب جداسازی، به ویژه در فشارهای پایین به روشنی دیده می‌شود، که گمان می‌رود نقشی هم چون جلوگیری از برخورد‌های مولکولی سر راست میان گونه‌ی ایزوتوپی  $^{13}CCl_4$  برانگیخته با گونه‌ی ایزوتوپی  $^{12}CCl_4$  نابرانگیخته داشته باشد. هم چنین، درباره‌ی  $H_2$  باید گفت که از یک سو، این مولکول می‌تواند با تشکیل مولکول‌های پایدار هم چون  $HCl$  افزایش ضریب جداسازی، به ویژه در فشارهای بالا را به همراه داشته باشد و از سوی دیگر، با واکنیزش برخوردی گونه‌های ایزوتوپی  $^{13}CCl_4$  و نیز برانگیزش گونه‌های  $^{13}CCl_4$  از راه واهلش‌های  $V-V$  و  $V-T$ ، افتی را در ضریب جداسازی به دنبال آورد. روی هم رفته، با رویکرد به نقش مثبت این گاز، چنین می‌نماید که دست کم در این رشته آزمایش‌ها، کارآیی آن در افزایش ضریب جداسازی به نقش منفی آن می‌چربد.

### ۵- نتیجه‌گیری

در این کار تحقیقاتی، جداسازی ایزوتوپ  $^{13}C$  از راه گسست چند فوتونی گاز  $CCl_4$  همراه با گزینندگی  $^{13}C$  به کمک تپ‌های



## References:

1. N.R. Isenor and M.C. Richardson, "Dissociation and Breakdown of Molecular Gases by Pulsed CO<sub>2</sub> Laser Radiation," *Appl. Phys. Lett.*, Vol. 18, 224-226 (1971).
2. P. Parvin, B. Sajad, K. Silakhori, N. Hooshvar, Z. Zamanipour, "Molecular Laser Isotope Separation versus Atomic Vapor Laser Isotope Separation," *Prog. Nucl. Energy*, Vol. 44 (4), 331-345 (2004).
3. M. Ivanenco, et al, "Large Scale <sup>13</sup>C/<sup>12</sup>C Separation by IR Multiphoton Dissociation of CFCl<sub>2</sub>," *Proceeding of International Conference "Lasers 97"*, New Orleans, USA (1997).
4. V.Yu. Baranov, et al, "Production of Carbon Isotopes by Laser Separation," *Proc. of SPIE*, Vol. 4165, 314-323 (2000).
5. P. Mathi, et al, "Laser Enrichment of Carbon-13: Optional Experience with a Large Photochemical Reactor for Macroscopic Separation," *J. Photochemistry and Photobiology. A: Chemistry*, Vol. 169, 29-36 (2005).
6. V.Yu. Baranov, S.A. Kazakov, V.A. Kuz'menko, S.V. Pigul'skiĭ, "Isotopically Selective Dissociation of Freon-12 Molecules in a Single-Frequency Pulsed CO<sub>2</sub> Laser Field," *Sov. J. Quantum Electron*, Vol. 14 (7), 1013-1015 (1984).
7. M. Gauthier, C. Wileiset, P.A. Hackett, "Etude Parametrique de l'enrichissement en carbone-13 dans la decomposition polyphotonique de CF<sub>3</sub>Cl," *Can. J. Chem*, Vol. 581, 913-917 (1980).
8. N. Honsen and A.M. Wodtke, "<sup>13</sup>C Isotope Separation Using Multiphoton excitation of Carbon monoxide," *Chem. Phys. Lett.*, Vol. 356, 340-346 (2002).
9. Yu.A. Kudryavtsev, "Influence of Temperature on the Selectivity of Carbon monoxide," *Sov. J. Quantum Electron*, Vol. 10 (9), 1143-1145 (1980).
10. J.J. Ritter, "Isotopically Selective CO<sub>2</sub> Transverse Excitation Laser Induced Chemical Reaction of CF<sub>2</sub>Cl<sub>2</sub> and Br<sub>2</sub>CF<sub>2</sub> with Olefins," *J. Am. Chem. Soc.*, Vol. 100:8, 2441-2444 (1978).
11. P.Ma.K. Sugitaand, S. Arai, "Highly Selective <sup>13</sup>C Separation by CO<sub>2</sub> Laser-Inducted IRMPD of CF<sub>2</sub>Cl<sub>2</sub>/HI and CF<sub>2</sub>ClBr/HI Mixtures," *Chem. Phys. Lett.*, Vol. 137(6), 590-595 (1987).
12. O.V. Boyarkin, M. Kowalczyk, T.R. Rizzo, "Collisionally Enhanced Isotope Selectivity in Multiphoton Dissociation of Vibrationally Radiation," *J. Chem. Phys.*, Vol. 118 (1), 93-103 (2003).
13. R.V. Ambartzumain, Yu.A. Corokov, V.S. Letokhov, A.A. Puretskiĭ, "Selective Dissociation Produced by the Action of A Strong IR Field on Weak Composite Oscillations of Polyatomic Molecules," *JETP Lett.*, Vol. 22 (7), 177-178 (1975).
14. R.V. Ambartzumain, Yu.A. Corokov, V.S. Letokhov, G.N. Makarav, A.A. Puretski, "Isotope-Selective Dissociation of CCl<sub>4</sub> Molecules by Excitation of Composite Vibrational Bands by Intense infrared Field," *Phys. Lett.*, Vol. 56A(3), 183-184 (1976).
15. R.V. Ambartzumain, N.P. Furzikov, V.S. Letokhov, "Isotopically Selective Dissociation of CCl<sub>4</sub> Molecule by NH<sub>3</sub> Laser Radiation," *Appl. Phys.*, Vol.15, 27-30 (1975).
16. R.V. Ambartzumain, et al, "Isotopically Selective Dissociation of High Power NH<sub>3</sub> Laser Radiation," *Sov. J. Quantum. Electron*, Vol. 8 (8), 1015-1018 (1978).
17. م.ع. حداد، ک. سیلاخوری، ع. بهجت، ف. سلطانمرادی، "جداسازی لیزری ایزوتوپ با استفاده <sup>13</sup>C از تپ‌های لیزر آمونیاک،" *کنفرانس هسته‌ای ایران، مشهد (۱۳۸۵)*.
18. ک. سیلاخوری، "جداسازی ایزوتوپ‌ها به کمک پالس‌های تیز لیزری به روش جذب چند فوتونی،" *پایان‌نامه کارشناسی ارشد، دانشکده فیزیک و علوم هسته‌ای، دانشگاه صنعتی امیرکبیر (۱۳۷۹)*.
19. م.ع. حداد، "جداسازی لیزری مولکولی ایزوتوپ کربن-۱۳ با بهره‌گیری از تپ‌های لیزرهای پروتون کوچک‌پذیر،" *پایان‌نامه کارشناسی ارشد، دانشکده فیزیک، دانشگاه یزد (۱۳۸۴)*.



20. F.H.M. Faisal, "Theory of Multiphoton Processes," Plenum Press, New York, (1986).
21. F.H.M. Faisal, "A Model for Dissociation of Polyatomic Molecules by Multiple Absorption of Photon," *Optic Communications*, Vol. 17(3), 247-249 (1976).
22. X. Bo-Min and W. Xie, "Statistical Theory of Multiphoton Excitation of Polyatomic Molecules Based on the Wigner Function," *J. Chem. Phys.*, 84(1), 114-121 (1986).
23. A. Behjat, et al, "Investigation on an Optically Pumped NH<sub>3</sub> Laser in 12-13 $\mu$ m Region," *Proc. of SPIE*, Vol. 5777, 535-531 (2004).
24. م.ع. حداد، ع. بهجت، ک. سیلاخوری، ف. سلطانمرادی، و... فتیحی، "طراحی و بهینه‌سازی یک لیزر آمونیاک از راه دمش نوری با لیزر OCAET<sub>2</sub>،" کنفرانس فیزیک ایران، خرم‌آباد (۱۳۸۴).
25. R.V. Ambartzumian, "Two Frequency Technique for Multiple-Photon Dissociation and laser Isotope Separation," In *Multiple-Photon Excitation and Dissociation of Polyatomic Molecules*, ed. By C.D. Cantrell, Springer-Verlag, 120-147 (1986).
26. B. Sajad, P. Parvin, K. Silakhori, Z. Zamanipour, N. Hooshvar, "Dissociation Rate Measurement for Selectivity Evaluation in SF<sub>6</sub>, Selective Dissociation by Multiline vs, Single Line CO<sub>2</sub> Laser," *J. Nuclear Science and Technology*, Vol. 41 (7), 771-776 (2004).