

эффекта на импульсном реакторе составляет 100 сек/сутки.

В опытах на АЭС оно в 350 раз больше. Величина s в опытах на АЭС падает еще больше, чем растет производительность, так как из \bar{C} в формуле (3) следует исключить затраты на сооружение и эксплуатацию реактора, поскольку они уже входят в стоимость электроэнергии.

Автор глубоко благодарен В. М. Лобашову и О. И. Сумбаеву за плодотворное обсуждение последнего раздела работы.

Поступило в Редакцию 12/IX 1973 г.

СПИСОК ЛИТЕРАТУРЫ

1. Бать Г. А., Коченов А. С., Кабанов Л. П. Исследовательские ядерные реакторы. М., Атомиздат, 1972.
2. Ерыкалов А. Н., Петров Ю. В. «Атомная энергия», 1968, т. 25, с. 52.
3. Цыканов В. А. «Атомная энергия», 1971, т. 31, с. 15.
4. Gurr H. e. a. «Phys. Rev. Letters», v. 28, p. 1406.
5. Фейнберг С. М., Шевелев Я. В. II Женевская конф. 1964, доклад СССР № 28-P-322.
6. Микаэлян Л. А., Спивак П. Е., Циноев В. Г. «Ядерная физика», 1965. т. 1, с. 853.
7. Ahrens T., Lang T. «Phys. Rev. C.», 1971, v. 3, p. 973.
8. Петросянец А. М. и др. АЭ, 1971, т. 31. с. 315.

Способ повышения эффективности фотохимического разделения изотопов

БАСОВ Ю. Г., МАКАРОВ В. Н.

УДК 621.039.3 : 621.039.335

Фотохимическое разделение изотопов может быть осуществлено с помощью источников света с линейчатым, сплошным или монохроматическим излучением. Для разделения стабильных изотопов водорода используют линейчатое излучение ртутной лампы низкого давления [1] и сплошное излучение дейтериевой лампы [2]. В работе [3] теоретически показаны возможности эффективного разделения изотопов при помощи монохроматического излучения. Экспериментальное разделение стабильных изотопов водорода монохроматическим лазерным излучением описано в работах [4, 5]. В [4] смесь метанола, брома и дейтерометанола облучали светом химического лазера на смеси фтора с водородом, а в работе [5] формальдегид облучали светом рубинового лазера с удвоением частоты ($\lambda = 347,2 \text{ нм}$). Результаты, полученные в [4, 5], а также данные по разделению изотопов брома с помощью лазерного излучения [6] проанализированы в обзорной работе [7].

Проводятся исследования по селективному возбуждению колебательных уровней молекул инфракрасным лазерным излучением [8]; в результате этих исследований появилась возможность осуществить двухступенчатую схему селективной фотодиссоциации молекул [9, 10]. Сущность схемы заключается в следующем. Лазерным излучением с определенной длиной волны селективно возбуждается первый колебательный уровень одной изотопной молекулы [10]. Одновременно с этим смесь изотопных молекул облучается вторым источником света (необязательно когерентный и монохроматический) с энергией фотонов, равной разнице между энергией фотодиссоциации и энергией возбуждения первого колебательного уровня молекул. Энергия фотонов этого источника света для непосредственной фотодиссоциации молекул мала. Поэтому селективно распадается только возбужденная молекула, атомы которой взаимодействуют с каким-либо веществом и выводятся из системы.

Ниже рассмотрено применение способа повышения эффективности фотохимического разделения изотопов с помощью газоразрядных источников света на примере стабильных изотопов водорода. На рис. 1 показана произвольная кривая $\varphi_\lambda = f(\lambda)$ — функция спектрального распределения интенсивности излучения газо-

разрядных ламп (φ_λ — интенсивность излучения; λ — длина волны). Вертикальные линии на рисунке расположены на длинах волн квантов света, соответствующих энергиям диссоциации D_2 (λ_1) и H_2 (λ_2). Площадь под кривой со стороны более коротких волн до λ_2 характеризует число фотонов Q_H , энергия которых больше энергии диссоциации H_2 (E_H), а площадь до λ_1 характеризует число фотонов Q_D , энергия которых больше энергии диссоциации D_2 (E_D).

Коэффициент разделения изотопов оценивается известной формулой

$$\alpha = N_H N'_D / N'_H N_D, \quad (1)$$

где N_H и N_D — число атомов водорода и дейтерия, образованных при диссоциации молекул; N'_H и N'_D — число этих же атомов в непродиссоциированных молекулах водорода. Величины N_H и N_D можно определить таким образом:

$$N_H = \gamma_H Q_H / E_H; \quad N_D = \gamma_D Q_D / E_D, \quad (2)$$

где γ_H и γ_D — квантовый выход реакции образования атомов водорода и дейтерия.

С учетом (2) коэффициент разделения определяется выражением

$$\alpha = N'_D Q_H \gamma_H E_D / N'_H Q_D \gamma_D E_H. \quad (3)$$

Из анализа этой формулы видно, что если с помощью фильтров отсекается ультрафиолетовое излучение с дли-

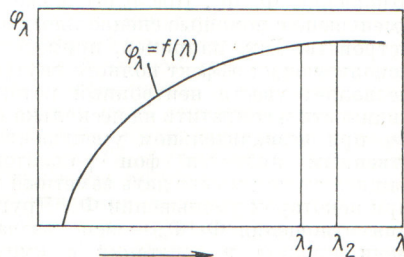


Рис. 1. Иллюстрация к оценке возможностей разделения изотопов с помощью источника света. (Стрелкой показано направление увеличения длины волны.)

нами волн короче λ_1 , то в основном будет меняться только отношение Q_H/Q_D . В формуле (3) это отношение может возрастать до бесконечности, если отсекается все излучение с $\lambda \leq \lambda_1$ и пропускать лишь излучение с $\lambda > \lambda_1$, т. е. осуществляется селективная диссоциация только молекул H_2 . При этом кванты света с $\lambda > \lambda_2$, по-видимому, не оказывают на фотохимический процесс никакого влияния, так как их энергия не настолько большая, чтобы произошел распад какой-либо из двух молекул H_2 или D_2 .

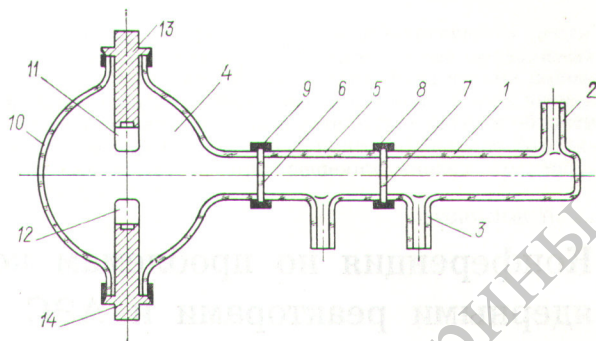
Таким образом, можно сделать вывод, что для повышения эффективности фотохимического разделения изотопов необходимо уменьшить долю коротковолнового излучения в световом потоке вплоть до длин волн, соответствующих энергии фотодиссоциации тяжелой изотопной молекулы.

Была осуществлена экспериментальная проверка предлагаемого способа на реакции фотохимического взаимодействия кислорода с водородом. Использовалась циркуляционная установка, описанная ранее [2], с измененной конструкцией фотохимического реактора (рис. 2). Последний представлял собой кварцевый цилиндр 1 с двумя патрубками 2 и 3 для ввода реагента и вывода продуктов реакции. Между импульсной лампой 4 и цилиндром 1 помещался сосуд 5, наполненный дейтерием, который служил фильтром, отсекающим коротковолновое излучение. Лампа 4, фильтр 5 и реакционный сосуд вакуумплотно соединялись между собой через окна 6 и 7 из фтористого лития. Для герметизации соединений использовалась кремнийорганическая смола с наполнителем из нитрида бора, размещаемая внутри полых металлических цилиндров 8 и 9. Импульсная лампа 4 состояла из кварцевой оболочки 10 шаровой формы, заполненной аргоном до 200 мм рт. ст. Вольфрамовые электроды 11 и 12 помещались в кварцевых держателях 13 и 14, которые крепились к кварцевой оболочке 10 с помощью оловянно-титанового припоя.

При выборе шаровой формы импульсной лампы исходили из двух обстоятельств: во-первых, неограниченный стенками канал импульсного разряда имеет более высокую температуру плазмы, что способствует повышенному выходу вакуумного ультрафиолета; во-вторых, шаровая форма оболочки лампы уменьшает воздействие ударных волн на окно из фтористого лития, возникающих при импульсном разряде, которые могут его разрушить. Разрядный промежуток лампы был примерно равен внутреннему диаметру кварцевых цилиндров 1 и 5. В рассматриваемом случае наполнение лампы аргоном предпочтительнее по сравнению с другими газами, так как излучение его континуума начинается приблизительно с 105 нм в сторону увеличения длин волн, что соответствует границе пропускания LiF. Дейтериевый фильтр 5 поглощал излучение квантов света с энергией, большей энергии фотовозбуждения D_2 , поэтому можно было ожидать, что диссоциации в реакционном сосуде преимущественно будут подвергаться только молекулы H_2 .

Эффективность дейтериевого фильтра зависит от длины пути, пройденного светом в газе, и от плотности частиц. Поэтому в нашем эксперименте для оценки влияния на коэффициент разделения плотности газовых частиц в фильтре опыты проводились при трех значениях давления D_2 : $5 \cdot 10^{-3}$, 400 и 2300 мм рт. ст.

Реакционная смесь против — дейтерий — кислород напускалась в циркуляционную установку до 600 мм рт. ст. в соотношении 1:1:30. Образующаяся в результате реакции вода осаждалась в ловушке,



Р и с. 2. Схема фотохимического реактора.

охлаждаемой парами жидкого азота. Изотопному масс-спектрометрическому анализу подвергались водород исходного состава и водород, не прореагировавший с кислородом. Эксперименты проводились при энергии разряда импульсной лампы 150 Дж, работающей с частотой повторения вспышек 0,5 гц, т. е. при средней мощности 75 Вт. При этом давление в системе заметно уменьшалось лишь в течение первых 5—10 мин.

В результате экспериментов установлено, что дейтерий накапливался в остатке не прореагировавшего водорода с коэффициентом разделения $2,9 \pm 0,4$ при давлении D_2 в сосуде 5, равном 2300 мм рт. ст. При 400 мм рт. ст. коэффициент разделения уменьшался до 1,7, а при давлении 10^{-3} мм рт. ст. разделения практически не наблюдалось.

Таким образом, для повышения эффективности фотохимического разделения изотопов необходимо уменьшать долю коротковолнового излучения в световом потоке вплоть до длин волн, соответствующих энергии фотодиссоциации тяжелой изотопной молекулы.

Экспериментальные результаты подтверждают правильность формулировки предложенного способа. Для увеличения коэффициента разделения свыше 2,9 необходимо улучшать способность поглощения дейтериевого фильтра, что может быть достигнуто за счет его удлинения или повышения плотности дейтерия.

Поступило в Редакцию 12/IX 1973 г.

СПИСОК ЛИТЕРАТУРЫ

1. Утиров Б. У. и др. «Атомная энергия», 1972, т. 32, с. 169.
2. Басов Ю. Г., Гребеньков В. С., Огинская Е. А. «Атомная энергия», 1973, т. 35, с. 132.
3. Басов Ю. Г. «Атомная энергия», 1972, т. 33, с. 842.
4. Mayer S. e. a. «J. Appl. Phys. Letters», 1970, v. 17, p. 516.
5. Yeung E., Moore C. «J. Appl. Phys. Letters», 1972, v. 21, p. 109.
6. Tiffany U. «J. Chem. Phys.», 1968, v. 48, p. 3019.
7. Moore C. «Ann. Rev. Phys. Chem.», 1971, v. 22, p. 387.
8. Летохов В. С., Макаров А. А. ЖЭТФ, 1972, т. 63, с. 2064.
9. Амбарцумян Р. В., Летохов В. С. «Appl. Optics», 1972, v. 11, p. 354.
10. Амбарцумян Р. В., Апатин В. М., Летохов В. С. «Письма в ЖЭТФ», 1972, т. 15, с. 336.