



## جداسازی لیزری مولکولی ایزوتوپ $^{13}\text{C}$ با بهره‌گیری از گسست چند فوتونی مولکول‌های $\text{CF}_2\text{HCl}$ با لیزر $\text{CO}_2$

صالحه بهشتی‌پور<sup>۱\*</sup>، جواد کریمی ثابت<sup>۱</sup>، رضا نشاطی<sup>۱</sup>، داود اسماعیل‌پور قوچانی<sup>۱</sup>، امیر عباسی<sup>۱</sup>  
۱. پژوهشکده فوتونیک و فن‌آوری‌های کوانتومی، پژوهشگاه علوم و فنون هسته‌ای، سازمان انرژی اتمی، صندوق پستی: ۸۳۶-۱۴۳۹۵، تهران - ایران  
۲. گروه فیزیک، واحد تهران مرکزی، دانشگاه آزاد اسلامی، صندوق پستی: ۶۹۱۹۱-۱۴۶۹۶، تهران - ایران

\*Email: saleheh1383@yahoo.com

### مقاله‌ی پژوهشی

تاریخ دریافت مقاله: ۱۴۰۰/۵/۱۲ تاریخ پذیرش مقاله: ۱۴۰۰/۹/۱۳

### چکیده

در این پژوهش، برای نخستین بار در کشور، جداسازی لیزری ایزوتوپ  $^{13}\text{C}$  از راه گسست چندفوتونی ایزوتوپ-گزین مولکول‌های گاز  $\text{CF}_2\text{HCl}$  در مقیاس آزمایشگاهی به انجام رسید. برای این کار، تپ‌های یک لیزر  $\text{TEA CO}_2$  کوک‌پذیر که با یک برش‌گر پلاسمایی کوتاه‌سازی شده‌اند، با شاریدگی  $50 \text{ J/cm}^2$  درون اتاقک تابش‌دهی کانونی شدند. اتاقک تابش‌دهی نیز با فشار  $10-20 \text{ mbar}$  از گاز  $\text{CF}_2\text{HCl}$  با نسبت‌های  $\text{CF}_2\text{HCl}:\text{He}$  برابر  $1:5$  و  $1:10$  پر شده بود. نشان داده شد که فراوانی ایزوتوپ  $^{13}\text{C}$  در فرآورده‌ی گسست  $\text{C}_2\text{F}_4$  با کاهش فشار گاز و شمار تپ‌های لیزری فرودی افزایش می‌یابد. در این آزمایش‌ها، بیشینه‌ی فراوانی ایزوتوپ  $^{13}\text{C}$  به‌دست آمده در آمیزه‌ی گازی با نسبت  $\text{CF}_2\text{HCl}:\text{He}$  برابر  $1:5$  و فشار  $\text{CF}_2\text{HCl}$  برابر  $10 \text{ mbar}$  به‌دست آمد که با  $1500$  تپ لیزری با شاریدگی  $50 \text{ J/cm}^2$  تابش‌دهی شده بودند.

**کلیدواژه‌ها:** جداسازی لیزری مولکولی، برش‌گر پلاسمایی، گسست چندفوتونی،  $\text{CF}_2\text{HCl}$

## Molecular laser isotope separation of $^{13}\text{C}$ isotope by multi-photon dissociation of $\text{CF}_2\text{HCl}$ molecules with $\text{CO}_2$ Laser

S. Beheshtipour<sup>\*1,2</sup>, J. Karimi Sabet<sup>1</sup>, R. Neshati<sup>1</sup>, D. Esmaeilpour Ghoochani<sup>1</sup>, A. Abbasi<sup>1</sup>

1. Photonics and Quantum Technologies Research School, Nuclear Science and Technology Research Institute, AEOI, P.O.Box: 14395-836, Tehran - Iran  
2. Department of Physics, Central Tehran Branch, Islamic Azad University, P.O.Box: 14696-69191, Tehran - Iran

### Research Article

Received 3.8.2021, Accepted 4.12.2021

### Abstract

In this work, laboratory-scale laser isotope separation of  $^{13}\text{C}$  by isotope-selective multi-photon dissociation of  $\text{CF}_2\text{HCl}$  gas molecules has been done. To do this, the pulses of a tunable TEA  $\text{CO}_2$  laser, which have been shortened using a plasma shutter, were focused inside the irradiation cell with fluence in  $50 \text{ J/cm}^2$ . The irradiation cell was filled with  $10-20 \text{ mbar}$  of  $\text{CF}_2\text{HCl}$  gas with  $\text{CF}_2\text{HCl}:\text{He}$  ratio of  $1:5$  and  $1:10$ . It has been shown that the abundance of  $^{13}\text{C}$  in  $\text{C}_2\text{F}_4$  product of dissociation increases with decreasing of the gas pressure and the number of the incident pulses. In these experiments, the highest abundance of  $^{13}\text{C}$  isotope was obtained with  $\text{CF}_2\text{HCl}:\text{He}$  ratio of  $1:5$  and ten mbar pressure of  $\text{CF}_2\text{HCl}$  gas, irradiated by 1500 pulses with  $50 \text{ J/cm}^2$  fluences.

**Keywords:** Molecular laser isotope separation, Plasma shutter, Multi-photon dissociation,  $\text{CF}_2\text{HCl}$



## ۱. مقدمه

جداسازی ایزوتوپ‌های C به روش لیزری مولکولی، چه در اندازه‌های آزمایشگاهی و چه در اندازه‌های صنعتی، سال‌هاست که در برخی از کشورهای جهان در دست پیگیری است و پیشرفت‌های چشمگیر بسیاری نیز در این زمینه به دست آمده‌اند. پیشینه‌ی جداسازی لیزری مولکولی ایزوتوپ‌ها، به نخستین سال‌های دهه‌ی ۷۰ میلادی بازمی‌گردد، که با گزارش جداسازی ایزوتوپ‌های B در مولکول  $BCl_2$  از سوی "لتوخوف"<sup>۱</sup> و "آمبارتزیومن"<sup>۲</sup> در اتحاد جماهیر شوروی [۱] و درست هم‌زمان با آن، گزارش جداسازی ایزوتوپ‌های S در مولکول  $SF_6$  از سوی "لیمن"<sup>۳</sup> و "رابینسون"<sup>۴</sup> در ایالات متحده‌ی آمریکا [۲] آغاز شد، که همگی با بهره‌گیری از تپ‌های کانونی شده‌ی لیزرهای پرتوان  $TEA CO_2$  به‌انجام رسیده بودند. از آن زمان تاکنون، شمار فراوانی از ایزوتوپ‌های گوناگون اتم‌هایی مانند: U, I, S, Si, N, C, B, H و دیگر اتم‌ها به این روش جداسازی گردیده‌اند [۱-۷]. در کشور ما نیز کارهای فراوانی بر روی جداسازی ایزوتوپ‌های اتم‌هایی همچون S [۸] و C [۹] به روش لیزری مولکولی انجام یافته‌اند که با کامیابی نیز همراه بوده‌اند.

در این میان، ایزوتوپ پایدار  $^{13}C$  (با فراوانی‌های ۱/۱۱٪)، به‌انگیزه‌ی کاربردهای گسترده و روزافزون در زمینه‌های گوناگون تشخیص پزشکی و داروسازی [۱۰]، پژوهش‌های زیست‌شناختی [۱۱]، گیاه‌پزشکی [۱۲]، کشاورزی [۱۳] و NMR [۱۴]، از جایگاهی ویژه برخوردار بوده است. کارهایی که در راستای جداسازی ایزوتوپ  $^{13}C$  انجام یافته‌اند، گستره‌ی بزرگی از مولکول‌ها همچون:  $CF_2HCl$ ,  $CF_2Cl_2$ ,  $CF_3H$ ,  $CF_3I$ ,  $CCl_4$  و بسیاری مانند آن‌ها را دربرمی‌گیرند [۹، ۱۵-۱۷]. در این میان، بررسی‌ها نشان داده‌اند که مولکول  $CF_2HCl$  (فرئون-۲۲) را باید بهترین و اقتصادی‌ترین نامزد برای فراوری انبوه و در مقیاس صنعتی این ایزوتوپ به‌شمار آورد؛ چرا که، این مولکول از بهترین کارایی چه از دیدگاه فشار کاری و چه از دیدگاه بازدهی برخوردار است. از سوی دیگر این گاز به دلیل کاربرد در سامانه‌ی خنک‌کننده‌ی یخچال‌ها، با بهای بسیار پایین و پالودگی خوب در بازار در دسترس است.

در این پژوهش، کوشش گردیده است تا برای نخستین بار در کشور، ایزوتوپ  $^{13}C$  از راه گسست چندفوتونی ایزوتوپ-گزین مولکول‌های گاز  $CF_2HCl$  به کمک تپ‌های لیزری

$TEA CO_2$  جداسازی گردد. هم‌چنین، اثر پارامترهایی گوناگونی مانند فشار گاز  $CF_2HCl$ ، نسبت گاز  $CF_2HCl$  به گاز کمکی He و شمار تپ‌های لیزری فرودی، بر گزینندگی و بازدهی این فرایند بررسی و مشخصه‌یابی شوند.

## ۲. مبانی نظری

لیزرها، هم‌چون چشمه‌ای پرتوان از پرتوهای همدوس و تکفام نوری، چشم‌اندازهای بسیار پهناوری را در پیش روی پژوهشگران برای جداسازی لیزری ایزوتوپ‌ها گشوده‌اند؛ تا بدانجا که، امروزه به‌سختی می‌توان ایزوتوپی را یافت که تاکنون کوششی برای جداسازی لیزری آن به‌انجام نرسیده باشد و یا کامیابی‌هایی، اگر چه در اندازه‌ی آزمایشگاهی، برای فراوری آن به این روش به‌دست نیامده باشد.

این رشته پژوهش‌ها، در دو فن‌آوری جداگانه که با نام‌های جداسازی ایزوتوپی لیزری بخار اتمی<sup>۵</sup> یا AVLIS و جداسازی ایزوتوپی لیزری مولکولی<sup>۶</sup> یا MLIS شناخته می‌شوند، به‌گونه‌ای هم‌زمان گسترش داده شده‌اند که هر کدام، با برتری‌ها و کاستی‌های خود، دست‌آوردهای درخوری برای دسته‌های گوناگونی از ایزوتوپ‌ها به‌همراه داشته‌اند [۱۸]. فرایند جداسازی ایزوتوپی لیزری مولکولی برپایه‌ی پی‌آمدهای ایزوتوپی اتم‌های سازنده‌ی مولکول‌ها بر ترازهای ارتعاشی-چرخشی مولکول‌ها و هم‌چنین، فرایند غیرخطی گسست چندفوتونی مولکول‌های چنداتمی در زیر تابش تپ‌های کوتاه و پرتوان همدوس لیزری استوار است. آشکار شده است که هنگام تابش‌دهی مولکول‌های چنداتمی با فوتون‌های تک-بسامد و همدوس هم‌خوان با نخستین گذار ارتعاشی آن‌ها، اگر شاریدگی<sup>۷</sup> یا چگالی سطحی انرژی فرودی از یک اندازه‌ی آستانه‌ای از چند  $J.cm^{-2}$  بالاتر باشد، مولکول می‌تواند در روند فرایندی که درآشامی چندفوتونی<sup>۸</sup> نامیده می‌شود، به‌ناگهان شمار فراوانی از فوتون‌های فرودی را درآشامد و با بالا رفتن از نردبان ترازهای ارتعاشی خود، به مرز گسست برسد. با رسیدن مولکول به مرز گسست، یکی از سست‌ترین پیوندهای آن گسسته می‌شود و مولکول دچار دگرگونی در ساختار شیمیایی خود خواهد گردید. شکل ۱ الگوی ساده شده‌ای از چگونگی این فرایند را برای یک مد ارتعاشی از یک مولکول چنداتمی نشان می‌دهد.

5. Atomic Vapor Laser Isotope Separation

6. Molecular Laser Isotope Separation

7. Fluence

8. Multi-Photon Absorption

Journal of Nuclear Science and Technology

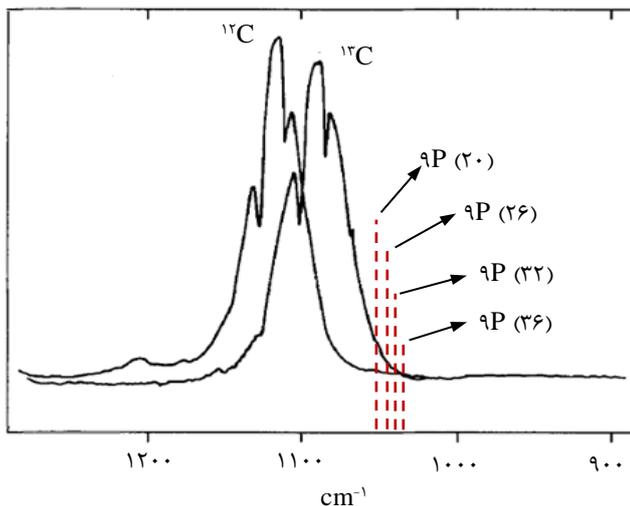
1. V.S. Letokhov

2. R.V. Ambartzumian

3. J.L. Lyman

4. C.P. Robinson





شکل ۲. بیناب درآشامی فرورسرخ گونه‌های ایزوتوپی  $^{13}\text{CF}_2\text{HCl}$  و  $^{12}\text{CF}_2\text{HCl}$  در بازه‌ی  $900-1300\text{ cm}^{-1}$  به همراه برخی از خط‌های گسیلی لیزر  $\text{CO}_2$  در شاخه‌ی ۹P [۱۹].

همان‌گونه که دیده می‌شود، در کناره‌ی رو به بسامدهای پایین‌تر یا کناره‌ی سرخ‌نوار، که با چیرگی دامنه‌ی بیناب وابسته به گونه‌ی ایزوتوپی  $^{13}\text{CF}_2\text{HCl}$  همراه است، با برخی از خط‌های گسیلی لیزر  $\text{CO}_2$  در شاخه‌ی ۹P هم‌پوشانی دارد. این چگونگی، شالوده‌ی دسترس‌پذیری انجام فرایند گسست چندفوتونی ایزوتوپ-گزین در این مولکول به‌شمار می‌رود.

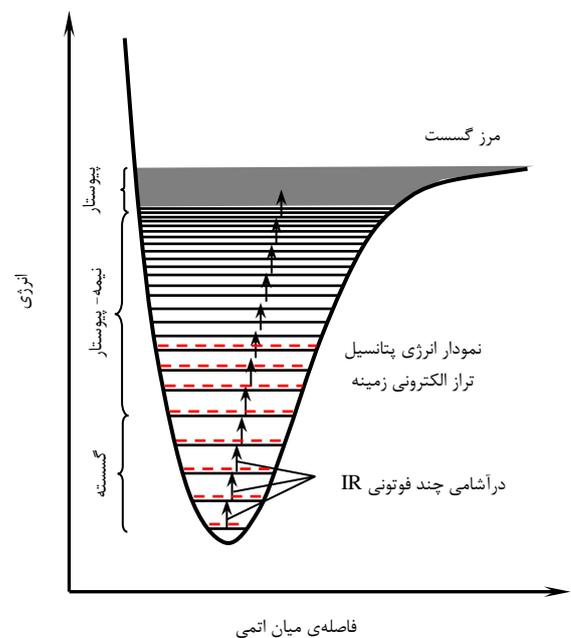
هنگامی که این مولکول در آرایش گازی با تپ‌های کانونی شده‌ی لیزر  $\text{CO}_2$  در یکی از خط‌های گسیلی در بازه‌ی ۹P(۱۲) تا ۹P(۳۴) و با شاریدگی انرژی آستانه‌ی بیش از  $3\text{ J/cm}^2$  تابش‌دهی می‌شود، گونه‌های ایزوتوپی  $^{13}\text{CF}_2\text{HCl}$  با پشت سر گذاشتن فرایند گسست چندفوتونی در پیوندهای سست‌تر C-H و C-Cl دچار گسست می‌شوند [۲۰]:



سپس مولکول‌های  $^{13}\text{CF}_2$  در روند واکنش‌های شیمیایی زیر، به ساختارهای شیمیایی پایدار تازه‌ای می‌رسند:



مولکول‌های  $\text{C}_2\text{F}_4$ ، که پایه‌ی شیمیایی تفلون هستند، فرآورده‌ی پایانی فرایند جداسازی به‌شمار می‌روند و می‌بایست از دیگر هم‌نه‌های<sup>۲</sup> گازی درون یاخته، جداسازی شیمیایی شوند. نمونه‌هایی از بیناب جرمی استاندارد گازهای  $\text{CF}_2\text{HCl}$  و  $\text{C}_2\text{F}_4$  در شکل‌های ۳ و ۴ آورده شده‌اند.

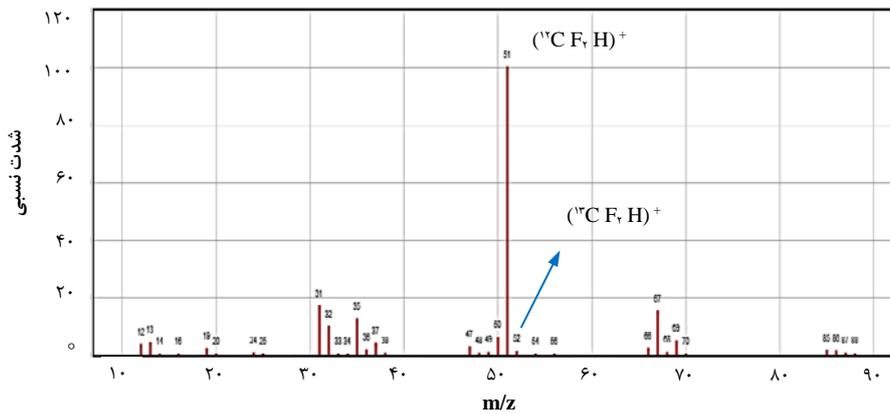


شکل ۱. الگوی ساده شده‌ی از چگونگی انجام فرایند درآشامی و گسست چندفوتونی ایزوتوپ-گزین برای یک مد ارتعاشی از یک مولکول چنداتمی. ترازهای گسسته نمایانده‌ی ترازهای ارتعاشی همان مد در گونه‌ی ایزوتوپی دیگر مولکول هستند [۹].

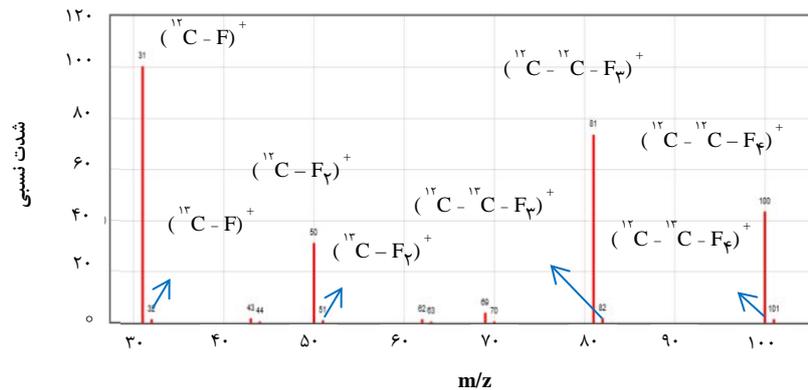
از سوی دیگر، چشمه‌های لیزری نه تنها می‌توانند پرتوهای همدوس و پرتوان بایسته برای انجام فرایند درآشامی و گسست چندفوتونی در مولکول‌ها را فراهم آورند، که با برخورداری از ویژگی‌های بی‌همتایی هم‌چون پهنای کم بسامدی و گسیل تپ‌های بسیار کوتاه زمانی یا با دیرش زمانی<sup>۱</sup> کم می‌توانند با گزینش تنها یک گونه‌ی ایزوتوپی دلخواه در میان آمیزه‌ای از گونه‌های ایزوتوپی جوراجور یک مولکول، فرایند گسست چندفوتونی را تنها در همان گونه‌ی برگزیده پی‌ریزی نمایند. بدین‌سان، تنها همان گونه‌ی ایزوتوپی برگزیده از مولکول دچار دگرگونی شیمیایی خواهد گردید. سپس، می‌توان آن را برپایه‌ی روش‌های شیمیایی شناخته شده و فراخور و بسیار ساده‌تر از روش‌های جداسازی ایزوتوپی شناخته شده، از آمیزه‌ی مولکولی برجا مانده بیرون کشید.

روند انجام فرایند گسست چندفوتونی با گزینندگی ایزوتوپی  $^{13}\text{C}$  در مولکول  $\text{CF}_2\text{HCl}$  را می‌توان به‌گونه‌ی زیر باز نمود: ناهمسانی‌های جرمی بین گونه‌های ایزوتوپی  $^{13}\text{CF}_2\text{HCl}$  و  $^{12}\text{CF}_2\text{HCl}$ ، ناهمسانی‌های کوچکی را در بیناب ارتعاشی-چرخشی آن‌ها به دنبال می‌آورد. بیناب‌های درآشامی IR این دو گونه‌ی ایزوتوپی در بازه‌ی  $900-1300\text{ cm}^{-1}$  در شکل ۲ در کنار یک‌دیگر آورده شده‌اند.





شکل ۳. بیناب جرمی استاندارد گاز طبیعی  $CF_2HCl$  [NIST].



شکل ۴. بیناب جرمی استاندارد گاز طبیعی  $C_2F_4$  [NIST].

برسانند. از همین رو، برای کنار زدن این دنباله‌ی تپ‌ها از یک سامانه‌ی برشگر پلاسمایی ساخته شده [۲۱] در این آزمایشگاه سود جسته شد.

ساختار برشگر پلاسمایی، که سازوکار آن به طور کامل در [۲۱] شرح داده شده، دربرگیرنده اتاقک گازی با یک تلسکوپ کپلری با بزرگ‌نمایی یک است، به گونه‌ای که نقطه‌ی هم‌پوشانی کانون‌ها درست در مرکز اتاقک است. درون این اتاقک از گازهایی که دارای بیناب درآشامی خطی در بازه‌ی گسیلی لیزرهای  $CO_2$  نباشند، مانند  $N_2$ ،  $He$  یا هوا پر می‌شود. اکنون، اگر شاریدگی تپ لیزری در حجم کانونی به اندازه‌ی بسنده بالا باشد، مولکول‌های گاز درون آن در یک فرایند درآشامی غیرخطی یونیزه خواهند شد و یک توده‌ی پلاسمایی در آن پدید خواهد آمد که با درآشامی هر چه بیش‌تر تپ لیزری، چگال‌تر و درآشامنده‌تر می‌گردد. سرانجام، همه‌ی انرژی تپ لیزری در این توده‌ی پلاسمایی درآشامیده می‌شود و دنباله‌ی تپ لیزری، همراه با بخشی از میخه‌ی آن، در بخش گذر کرده‌ی آن ناپدید می‌گردد. یک نمونه از این تپ‌های برش یافته‌ی به دست آمده با دیرش زمانی پیرامون ۲۵ ns در شکل ۵ ب دیده می‌شود.

از این بیناب‌ها می‌توان دریافت که بهترین گستره برای اندازه‌گیری فراوانی ایزوتوپی  $^{13}C$  در مولکول‌های  $C_2F_4$ ، که در یاخته‌ی گاز تابش دیده با مولکول‌های  $CF_2HCl$  نیز آمیخته هستند،  $m/Z=81$  و  $m/Z=82$  هستند، که هم دامنه‌ی بزرگی دارند و هم با بیناب مولکول  $CF_2HCl$  هم‌پوشانی ندارند.

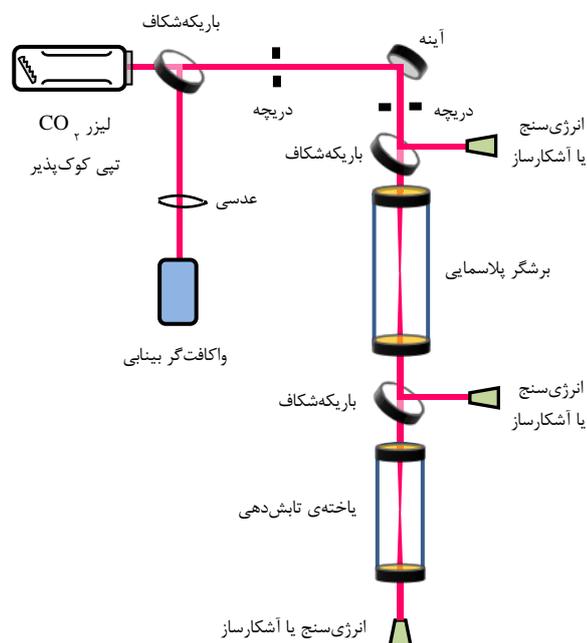
### ۳. روش آزمایش

در این رشته آزمایش‌ها، فرایند تابش‌دهی با یک لیزر  $CO_2$  تپی کوک‌پذیر مدل Lumonics, TEA-۸۴۰ انجام شده است. این لیزر، با آمیزه‌ی گازی  $CO_2:N_2:CO:He \equiv 1:1:0.5:3/75$ ، دارای تپ‌هایی با انرژی بیشینه‌ی ۵ J در خط‌های پر بهره است.

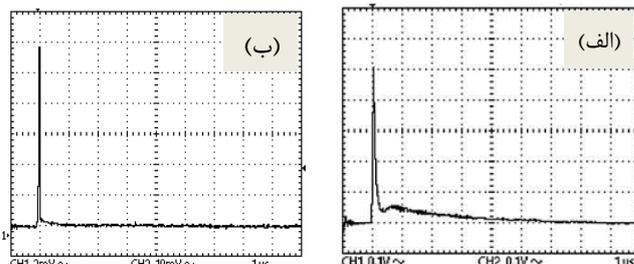
شکل ۵ الف رفتار زمانی نمونه‌ای تپ‌های گسیلی این لیزر را نشان می‌دهد. رد زمانی این تپ‌ها دربرگیرنده‌ی یک میخه‌ی پیش‌روی تیز با دیرش زمانی پیرامون ۱۰۰ ns است که با یک دنباله به درازای ۳-۵  $\mu s$  دنبال می‌شود. این دنباله، پیامد ویرانگری بر گزینندگی فرایند گسست چندفوتونی مولکول‌های  $CF_2HCl$  دارد؛ چرا که می‌تواند گونه‌های ایزوتوپی ناخواسته‌ی  $^{12}CF_2HCl$  را که در برخورد با گونه‌های خواسته و برانگیخته‌ی  $^{13}CF_2HCl$  به گستره‌ی نیمه‌پیوستار رسیده‌اند، به مرز گسست



بیناب جرمی گاز تابش‌دهی شده در فشار ۱۰ mbar از گاز  $\text{CF}_2\text{HCl}$  با ۵۰ mbar از گاز He، که در آن بیناب وابسته به فرآورده‌های گسست  $\text{C}_2\text{F}_4$  دیده می‌شود، در شکل ۸ آورده شده است.



شکل ۶. طرح‌واره‌ی آرایه‌ی تابش‌دهی.



شکل ۵. (الف) رفتار زمانی نمونه‌ای تپ‌های گسیلی لیزر به‌کار رفته. (ب) نمونه‌ای از تپ‌های لیزری برش‌یافته با برشگر پلاسمایی ساخته شده.

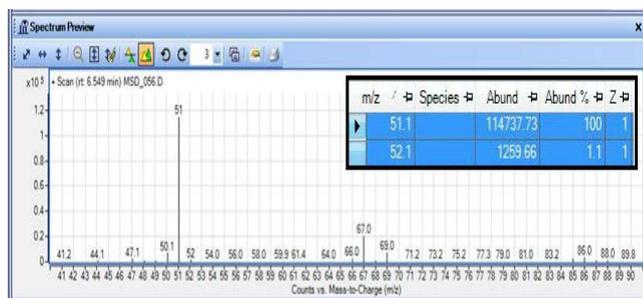
یاخته‌ی تابش‌دهی از جنس پلی‌اتیلن ساخته شده و با درازای ۱۰ cm بوده است که در یک دهانه‌ی آن یک عدسی با فاصله‌ی کانونی ۵ cm و در دهانه‌ی دیگر آن یک پنجره‌ی  $\text{NaCl}$  آب‌بندی شده است. افزاره‌های اپتیکی و شیرهای به‌کار رفته در این یاخته به‌گونه‌ای هستند که می‌توانند آب‌بندی یاخته را تا فشار بیش از ۲ atm برآورده سازند.

آرایه‌ای که برای تابش‌دهی به‌کار رفته، در شکل ۶ نشان داده شده است. نخست، اندازه‌ی لکه‌ی باریکه با دست‌کاری دهانه‌ی دریچه برگزیده می‌شود. انرژی و خط گسیلی لیزر نیز با بهره‌گیری از باریکه‌شکاف، انرژی‌سنج و واکافت‌گر بینایی سنجیده می‌شوند. سرانجام، تپ‌های لیزری آماده شده، از راه یک آینه‌ی با بازتابندگی ۱۰۰٪ به برشگر پلاسمایی فرستاده می‌شوند و پس از کوتاه شدن، یک‌راست راهی یاخته‌ی تابش‌دهی می‌گردند. با بهره‌گیری از سامانه‌ی گازدهی، می‌توان هر آمیزه‌ای از گازهای  $\text{CF}_2\text{HCl}$  و He با فشارهای دلخواه را درون یاخته‌های تابش‌دهی بسته شده به این سامانه، پر کرد. در این آزمایش‌ها از یک کپسول گاز  $\text{CF}_2\text{HCl}$  با خلوص ۱۰۰٪ (صنعتی) سود جسته شد.

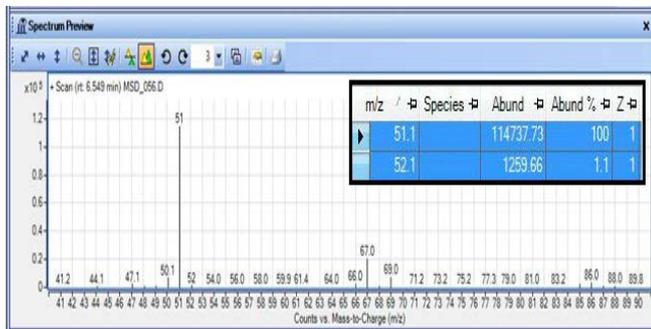
برای سنجش دگرگونی‌های مولکولی ایزوتوپی پدید آمده در گاز تابش‌دهی شده و اندازه‌گیری فراوانی ایزوتوپ  $^{13}\text{C}$  در فرآورده‌ی گسست  $\text{C}_2\text{F}_4$  پدیدار شده، یاخته‌ی تابش‌دهی از چیدمان لیزری جدا می‌شد و به دستگاه بیناب‌سنج جرمی (Agilent, ۷۸۹۰B GC-۵۹۷۷ MSD) با دقت ۱ amu بسته می‌شد. این رشته آزمایش‌ها، با خط لیزری ۹P(۲۶) و آهنگ تکرار تپ ۱ Hz با شاریدگی  $۵۰ \text{ J/cm}^2$  به‌انجام رسیده‌اند. شاریدگی آستانه‌ی گسست چندفوتونی مولکول‌های  $\text{CF}_2\text{HCl}$  در گزارش‌های گوناگون چیزی پیرامون  $۳-۵ \text{ J/cm}^2$  گزارش شده است.

#### ۴. نتایج و بحث

شکل ۷ نمونه‌ای از بیناب جرمی به‌دست آمده از گاز  $\text{CF}_2\text{HCl}$  طبیعی در فشار ۲۰ mbar را نشان می‌دهد.



شکل ۷. بیناب جرمی به‌دست آمده از  $\text{CF}_2\text{HCl}$  طبیعی در فشار ۲۰ mbar.



شکل ۸. نمونه‌ای از بیناب جرمی به‌دست آمده از  $\text{C}_2\text{F}_4$  پدید آمده از تابش‌دهی  $\text{CF}_2\text{HCl}$  در فشار ۱۰ mbar.



جدول ۱. فراوانی ایزوتوپ  $^{13}\text{C}$  در مولکولهای  $\text{C}_2\text{F}_4$  پدید آمده در شرایط گوناگون

شماره	فشار گاز $\text{CF}_2\text{HCl}$ (mbar)	نسبت فشاری $\text{CF}_2\text{HCl}:\text{He}$	شمار تپهای فرودی	فراوانی $^{13}\text{C}$ (%)
۱	۲۰	۱:۱۰	۳۰۰۰	۳۲.۶
۲	۲۰	۱:۱۰	۱۵۰۰	۴۷
۳	۱۰	۱:۱۰	۳۰۰۰	۷۳.۲
۴	۲۰	۱:۵	۱۵۰۰	۸۶
۵	۱۰	۱:۵	۱۵۰۰	۹۰

همچنین، برخی از گزارشها نشان از آن دارند که بهره‌گیری از گاز کمکی He با نسبت‌های بالا می‌تواند کارایی چشمگیری در بهبود گزینندگی ایزوتوپی فرایند داشته باشد [۲۲]. چرا که گمان می‌رود اتم‌های سبک He می‌توانند با واکنیزش ارتعاشی مولکول‌های گونه‌ی ایزوتوپی ناخواسته‌ای که به ترازهای بالاتر رسیده‌اند، از شمار آن‌هایی که ممکن است خود را به مرز گسست برسانند، بکاهد. از همین‌رو، بیش‌تر این آزمایش‌ها با نسبت ۱:۱۰ از گاز فرئون به هلیوم انجام یافتند. با این همه، دیده شد که کاهش این نسبت به ۱:۵ در شرایط یکسان، فراوانی ایزوتوپ  $^{13}\text{C}$  نزدیک به دو برابر افزایش یافت (مقایسه‌ی ردیف‌های ۲ با ۴ در جدول ۱). گمان می‌رود این ناسازگاری با گزارش‌های دیگران، ریشه در اختلاف چشمگیر دیرش زمانی تپ‌های لیزری به کار رفته داشته باشد. چرا که آزمایش‌های نشان‌دهنده‌ی کارکرد سازنده‌ی گاز He، با دیرش زمانی تپ‌های لیزری بسیار بزرگ‌تری (۱۰۰-۳۰۰ ns) از آن‌چه در این پژوهش به کار رفته (۲۵ ns) به انجام رسیده‌اند. بر این پایه، می‌توان گفت که برای دیرش زمانی کوتاه تپ‌های لیزری به کار رفته در این شرایط، نسبت بهینه‌ی گاز He نیز اندازه‌ی کم‌تری دارد. در همین راستا، با همین نسبت گازی در فشار ۱۰ mbar از  $\text{CF}_2\text{HCl}$ ، بیشینه‌ی فراوانی ۹۰٪ به دست آمد (ردیف ۵ جدول ۱).

شمار تپ‌های فرودی نیز، یکی دیگر از عوامل مؤثر بر گزینندگی روی هم رفته‌ی به دست آمده است. همان‌گونه که دیده می‌شود، شمار تپ‌های به کار رفته در این آزمایش‌ها برابر ۱۵۰۰ و ۳۰۰۰ بوده است. بررسی یافته‌ها (مقایسه‌ی ردیف‌های ۱ با ۲ در جدول ۱) به خوبی نشان می‌دهند که با افزایش شمار تپ‌های فرودی در شرایط یکسان، از فراوانی ایزوتوپ  $^{13}\text{C}$  کاسته می‌گردد. می‌دانیم که فرایند گسست چندفوتونی در چنین شرایطی همواره با یک ناگزینندگی ناخواسته همراه است

برای برآورد اندازه‌ی فراوانی ایزوتوپ  $^{13}\text{C}$  در فرآورده‌ی گسست  $\text{C}_2\text{F}_4$ ، شمارش یونی دستگاه بیناب‌سنج جرمی وابسته به گونه‌های ایزوتوپی  $(^{13}\text{C}-^{13}\text{C}-\text{F}_3)^+$ ،  $(^{13}\text{C}-^{12}\text{C}-\text{F}_3)^+$  و  $(^{13}\text{C}-^{12}\text{C}-\text{F}_2)^+$  را به ترتیب  $N_{22}$ ،  $N_{23}$  و  $N_{33}$  می‌گیریم. روشن است که شمار اتم‌های C (دربرگیرنده‌ی ایزوتوپ‌های  $^{13}\text{C}$  و  $^{12}\text{C}$ ) در این مولکول‌ها متناسب با شمار روی هم رفته‌ی این مولکول‌ها،  $N_{\text{tot}}$  است:

$$N_{\text{C}} \propto N_{\text{tot}} = N_{22} + N_{23} + N_{33} \quad (۳)$$

از سوی دیگر، چون نیمی از اتم‌های C در گونه‌ی ایزوتوپی  $^{13}\text{C}-^{12}\text{C}-\text{F}_4$  ایزوتوپ  $^{13}\text{C}$  هستند، شمار ایزوتوپ‌های متناسب است با:

$$N_{\text{C-}^{13}} \propto \frac{N_{23}}{2} + N_{33} \quad (۴)$$

بدین‌سان، فراوانی ایزوتوپ  $^{13}\text{C}$  برابر خواهد بود با:

$$R_{\text{C-}^{13}} = \frac{N_{\text{C-}^{13}}}{N_{\text{tot}}} = \frac{\frac{1}{2}N_{23} + N_{33}}{N_{22} + N_{23} + N_{33}} \quad (۵)$$

برای بررسی وابستگی فراوانی ایزوتوپ  $^{13}\text{C}$  در مولکول‌های  $\text{C}_2\text{F}_4$  پدید آمده به پارامترهای گوناگونی مانند فشار گاز  $\text{CF}_2\text{HCl}$ ، نسبت گاز  $\text{CF}_2\text{HCl}$  به گاز کمکی He و شمار تپ‌های لیزری فرودی، فرایند تابش‌دهی در شرایط گوناگون انجام گردید و بیناب جرمی گاز تابش‌دیده ارزیابی شد. اندازه‌های به دست آمده در جدول ۱ گرد آمده‌اند.

پیش از هر چیز، دیده می‌شود که با بیش‌تر شدن فشار گاز  $\text{CF}_2\text{HCl}$  در شرایط یکسان (مقایسه‌ی ردیف‌های ۱ با ۳ و ۴ با ۵ در جدول ۱)، فراوانی ایزوتوپ  $^{13}\text{C}$  کاهش می‌یابد. این رفتار، از آن روی است که با افزایش فشار گاز  $\text{CF}_2\text{HCl}$ ، آهنگ واهلش‌های برخوردی میان گونه‌های ایزوتوپی  $^{13}\text{CF}_2\text{HCl}$  برانگیخته و  $^{12}\text{CF}_2\text{HCl}$  نابرانگیخته بیش‌تر می‌شود و به دنبال آن، شمار بیش‌تری از گونه‌های مولکولی ناخواسته‌ی  $^{13}\text{CF}_2\text{HCl}$  خواهند توانست به گستره‌ی نیمه- پیوستار ترازهای ارتعاشی- چرخشی خود برسند. پس از آن، این مولکول‌ها می‌توانند با درآشامی سرراست فوتون‌های فرودی، خود را به مرز گسست برسانند و سرانجام از فراوانی ایزوتوپ  $^{13}\text{C}$  در فرآورده‌ی گسست بکاهند.



### مراجع

1. R.V. Ambartsumian, et al., *Investigation of dissociation of  $\text{BCl}_3$  molecules in the field of an intense  $\text{CO}_2$ -laser pulse*, *Zh. Eksp. Teor. Fiz.*, **69**, 72 (1975).
2. J.L. Lyman, et al., *Isotopic enrichment of  $\text{SF}_6$  in  $^{34}\text{S}$  by multiple absorption of  $\text{CO}_2$  laser radiation*, *Appl. Phys. Lett.*, **27(2)**, 87 (1975).
3. I. Deac, *Parametric study of the IRMPD of  $\text{CF}_2\text{HCl}$  molecules with the 9P22  $\text{CO}_2$  laser line*, *Appl. Phys.*, **B. 51(3)**, 211 (1990).
4. H.L. Chen, C. Borzileri, *Nitrogen isotope separation by multiphoton dissociation of methylamine*, *J. Appl. Phys.*, **50(11)**, 7177 (1979).
5. J.B. Marling, *Laser isotope separation of deuterium*, *Chem. Phys. Lett*, **34(1)**, 84 (1975).
6. J.L. Lyman, S.D. Rockwood, *Enrichment of boron, carbon, and silicon isotopes by multiple-photon absorption of 10.6- $\mu\text{m}$  laser radiation*, *J. Appl. Phys.*, **47(2)**, 595 (1976).
7. R.J. Jensen, et al., *Prospects for uranium enrichment*, *Laser Focus*, **12**, 51 (1976).
8. P. Parvin, et al., *Selective Obliteration of  $\text{SF}_6$  Molecules Based on Multiphoton Absorption*, *CLEO-Europe/EQEC* (2003).
9. K. Silakhori, et al., *Utilizing  $\text{NH}_3$  Laser Pulses in Multiphoton Dissociation Process of  $\text{CCl}_4$  Molecules with  $^{13}\text{C}$  Isotope Selectivity*, *JonSat*, **30(2)**, 38 (2009).
10. H. Alzoubi, et al., *The Use of  $^{13}\text{C}$ -Urea Breath Test for Non-Invasive Diagnosis of Helicobacter pylori Infection in Comparison to Endoscopy and Stool Antigen Test*, *Diagnostics*, **10(7)**, 448 (2020).
11. M. Esposito, et al., *Application of stable carbon isotopes in a subtropical North Atlantic Mesocosm Study: A new approach to assess  $\text{CO}_2$  effects on the marine carbon cycle*, *Front. Mar. Sci.*, **6**, 616 (2019).
12. R. Castillo-Argaez, et al., *Leaf gas exchange and stable carbon isotope composition of redbay and avocado trees in response to laurel wilt or drought stress*, *EEB*, **171**, 103948 (2020).
13. A. Mora-González, et al., *Complex agriculture during the second millennium bc: isotope composition of carbon studies ( $^{13}\text{C}$ ) in archaeological plants of the settlement Cerro del Castillo de Alange (SW Iberian Peninsula, Spain)*, *Veg. Hist. Archaeobotany*, **27(3)**, 453 (2018).
14. C. Pironti, et al., *Determination of the  $^{13}\text{C}/^{12}\text{C}$  carbon isotope ratio in carbonates and bicarbonates by  $^{13}\text{C}$  NMR spectroscopy*, *Anal. Chem.*, **89(21)**, 11413 (2017).

که ریشه در هم‌پوشانی بیناب درآشامی دو گونه‌ی ایزوتوپی خواسته و ناخواسته در طول موج تپ‌های لیزری فرودی و هم‌چنین، داد و ستدهای برخوردی ارتعاشی میان آن‌ها دارد. روشن است که هر چه فراوانی گونه‌ی ایزوتوپی خواسته کم‌تر باشد، کارایی این عوامل ناگزینده بیش‌تر می‌شود. بر این پایه، به‌خوبی می‌توان دریافت که بهترین‌گزینه‌ی گزینندگی با نخستین تپ لیزری به‌دست خواهد آمد و پس از آن، با هر چه پیش‌تر رفتن فرایند و کاسته شدن از شمار گونه‌ی ایزوتوپی خواسته در آمیزه‌ی گازی، رفته رفته از گزینندگی کاسته می‌گردد؛ اگر چه، روی هم رفته فرآورده‌ی گسست بیش‌تری به‌دست می‌آید. افزون بر این، افزایش شمار تپ‌های فرودی، گرمایش بیش‌تر آمیزه‌ی گازی را نیز به‌دنبال خواهد داشت، که می‌تواند با افزایش چگالی مولکول‌ها در ترازهای برانگیخته‌ی ارتعاشی- چرخشی، از گزینندگی ایزوتوپی فرایند بکاهد.

### ۵. نتیجه‌گیری

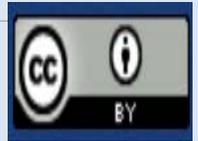
برای نخستین بار در کشور، جداسازی ایزوتوپ  $^{13}\text{C}$  از راه گسست چندفوتونی ایزوتوپ- گزین مولکول‌های گاز  $\text{CF}_2\text{HCl}$  در مقیاس آزمایشگاهی با بهره‌گیری از تپ‌های برش‌یافته‌ی یک لیزر  $\text{TEA CO}_2$  انجام شد. نشان داده شد که با این روش می‌توان به فرآورده‌ی  $\text{C}_2\text{F}_4$  با فراوانی تا ۹۰٪ نیز دست یافت. هم‌چنین، دیده شد که با کاستن از فشار گاز  $\text{CF}_2\text{HCl}$  و شمار تپ‌های لیزری فرودی می‌توان فراوانی ایزوتوپ  $^{13}\text{C}$  در فرآورده‌ی گسست  $\text{C}_2\text{F}_4$  را افزایش داد.



15. G.I. Abushelishvili, et al., *Selective dissociation of CF<sub>3</sub>I in a CO<sub>2</sub>-laser infrared field in the presence of acceptors*, *Sov. J. Quantum Electron*, **11(3)**, 326 (1981).
16. O.V. Boyarkin, et al., *Collisionally enhanced isotopic selectivity in multiphoton dissociation of vibrationally excited CF<sub>3</sub>H*, *J. Chem. Phys.*, **118(1)**, 93 (2003).
17. V.B. Laptev, S.V. Pigulsky, V.S. Mezhevov, *Production of high-enriched carbon-13 by two-stage laser method*, *In Journal of Physics: Conference Series (Vol. 1696, No. 1, p. 012016)*. IOP Publishing. (2020, December).
18. P. Parvin, et al., *Molecular laser isotope separation versus atomic vapor laser isotope separation*, *Prog. Nucl. Energy.*, **44(4)**, 331 (2004).
19. M. Gauthier, et al., *Second-stage enrichment in the laser separation of carbon isotopes*, *Appl. Phys., B*. **35(3)**, 173 (1984).
20. V. Parthasarathy, et al., *Efficient multiphoton dissociation of CF<sub>2</sub>HCl in waveguide reactors with high selectivity*, *J. Photochem. Photobiol., A*. **110(1)**, 11 (1997).
21. S. Beheshtipour, et al., *Investigation on the TEA CO<sub>2</sub> laser-induced optical breakdown in different gases and its effect on the pulses shape*, *JonSat*. **40(3)**, 46 (2019).
22. W. Fuss, et al., *Isotope selective dissociation of CHClF<sub>2</sub> by a one and two-wavelength Q-switched CO<sub>2</sub> laser*, *Z. Phys. D Atoms, Molecules and Clusters*, **24(1)**, 47 (1992).

**COPYRIGHTS**

©2021 The author(s). This is an open access article distributed under the terms of the Creative Commons Attribution (CC BY 4.0), which permits unrestricted use, distribution, and reproduction in any medium, as long as the original authors and source are cited. No permission is required from the authors or the publishers.



استناد به این مقاله

صالحه بهشتی‌پور، جواد کریمی ثابت، رضا نشاطی، داود اسماعیل‌پور قوچانی، امیر عباسی (۱۴۰۲)، جداسازی لیزری مولکولی ایزوتوپ <sup>13</sup>C با بهره‌گیری از گسست چند فوتونی مولکول‌های CF<sub>2</sub>HCl با لیزر CO<sub>2</sub>، ۱۰۳، ۱۳۶-۱۴۳

DOI: [10.24200/nst.2022.1635](https://doi.org/10.24200/nst.2022.1635)

Url: [https://jonsat.nstri.ir/article\\_1522.html](https://jonsat.nstri.ir/article_1522.html)

