

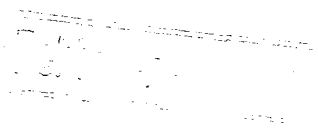
⑤

Int. Cl. 2:

**B 01 D 59/00**

⑱ **BUNDESREPUBLIK DEUTSCHLAND**

**DEUTSCHES PATENTAMT**



**DT 26 09 205 A 1**

⑪

# **Offenlegungsschrift 26 09 205**

⑫

Aktenzeichen: P 26 09 205.7-43

⑬

Anmeldetag: 5. 3. 76

⑭

Offenlegungstag: 22. 9. 77

⑳

Unionspriorität:

⑳ ㉑ ㉒

—

⑤④

Bezeichnung: Verfahren zur Isotopentrennung mit Hilfe einer kohärenten elektromagnetischen Strahlung

⑦①

Anmelder: Kraftwerk Union AG, 4330 Mülheim

⑦②

Erfinder: Janner, Karl, Dipl.-Phys., 8520 Erlangen; Gregorius, Klaus, Dipl.-Phys., 8521 Neunkirchen; Stehle, Heinz, Dr.rer. nat., 8521 Marloffstein

Prüfungsantrag gem. § 28 b PatG ist gestellt

**DT 26 09 205 A 1**

Patentansprüche

1. Verfahren zur Isotopentrennung bzw. Anreicherung in einem dampfförmigen Gemisch von Verbindungen oder Atomen der Isotope mit Hilfe einer kohärenten polarisierten elektromagnetischen Strahlung, dadurch gekennzeichnet, daß das dampfförmige Isotopengemisch in an sich bekannter Weise von einer Strahlung durchsetzt wird, deren Frequenz und Feldstärke so eingestellt wird, daß das Dipolmoment der anzuregenden Molekülgruppe mindestens bei der Endamplitude hauptsächlich gegenphasig, die äquivalente Gruppe des anderen Isotops dagegen jedoch hauptsächlich gleichphasig zum erregenden Feld schwingt.
2. Verfahren zur Isotopentrennung bzw. Anreicherung in einem dampfförmigen Gemisch von Verbindungen oder Atomen der Isotope mit Hilfe einer kohärenten polarisierten elektromagnetischen Strahlung, dadurch gekennzeichnet, daß das dampfförmige Isotopengemisch in an sich bekannter Weise von einer Strahlung durchsetzt wird, deren Frequenz näher der Resonanzfrequenz der abzutrennenden Molekülgruppe als der äquivalenten Gruppe des anderen Isotops und in der Größenordnung des isotopenbedingten Frequenzunterschiedes liegt und beide Molekülarten gegenphasig schwingen.
3. Verfahren nach Anspruch 1 und 2, dadurch gekennzeichnet, daß das dampfförmige Isotopengemisch in an sich bekannter Weise von der Strahlung durchsetzt wird, deren Frequenz so eingestellt ist, daß die Molekül- oder Atomdipole des selektiv anzuregenden Isotops hauptsächlich gegenphasig zum erregenden Feld der Strahlung schwingen und daß neben der Grundfrequenz der kohärenten Strahlung Oberwellen derselben in dem Maß eingestrahlt werden, daß eine Verlagerung der Eigenfrequenz der Dipole verhindert wird.

VPA 75 E 9361/62

709838/0028

4. Verfahren nach den Ansprüchen 1 - 3, dadurch gekennzeichnet, daß nach Erreichung der maximalen Schwingungsamplitude zur Auslösung einer Dissoziation oder chemischen Reaktion eine Störung dieses Zustandes vorgenommen wird.
- 5
5. Verfahren nach Anspruch 4, dadurch gekennzeichnet, daß die Störung des erreichten maximalen Schwingungszustandes durch Molekülzusammenstöße, beispielsweise durch entsprechende Druckeinstellung bzw. durch Leistungsänderung der Strahlung innerhalb einer Schwingungsperiode oder durch einen Zusatzimpuls erzielt wird.
- 10
6. Verfahren nach den Ansprüchen 1 - 5, dadurch gekennzeichnet, daß zur Einengung des Spektrums bei Molekülen mit breitem Absorptionsspektrum in an sich bekannter Weise eine adiabatische Entspannung des Gemisches vor seinem Eintritt in die kohärente Strahlung - evtl. unter vorheriger Zumischung eines Gases mit hohem Adiabaten-Koeffizienten - vorgenommen wird.
- 15
7. Verfahren nach den Ansprüchen 1 - 6, dadurch gekennzeichnet, daß zur Erhöhung der Wirtschaftlichkeit des Verfahrens von dem an sich bekannten Prinzip der Druckrückgewinnung im Reaktionsraum Gebrauch gemacht wird.
- 20
8. Verfahren nach den Ansprüchen 1 - 7, dadurch gekennzeichnet, daß nach der selektiven Anregung eine kurzzeitige Erhöhung der Feldstärke zur Erzielung höherer Anregungszustände vorgenommen wird, wobei deren Dauer so bemessen ist, daß hauptsächlich die selektiv stärker angeregten Molekülgruppen dissoziieren bzw. reagieren.
- 25
- 30

9. Verfahren nach den Ansprüchen 1 - 7, dadurch gekennzeichnet, daß zur Einstellung optimaler Amplituden und Amplitudenverhältnisse des Isotopengemisches eine an die jeweilige Feldstärke angepaßte Frequenznachführung vorgesehen ist.

5

10. Verfahren nach den Ansprüchen 1 - 7, dadurch gekennzeichnet, daß nach der selektiven Anregung zur Erzielung höherer Anregungszustände eine zusätzliche, für sich nicht unbedingt selektiv wirkende Strahlung vorgesehen ist.

Verfahren zur Isotopentrennung mit Hilfe einer  
kohärenten elektromagnetischen Strahlung

Die vorliegende Erfindung betrifft ein Verfahren zur Isotopen-  
trennung bzw. Anreicherung in einem dampfförmigen Gemisch von  
Verbindungen oder Atomen der Isotope mit Hilfe einer kohärenten  
polarisierten elektromagnetischen Strahlung. Eine solche  
5 Strahlung läßt sich mit Lasern der verschiedensten Art er-  
reichen. Es sind auch schon verschiedentlich Vorschläge gemacht  
worden, eine derartig hochenergetische Strahlung zur nuklid-  
spezifischen Anregung von Atomen und Molekülen zu verwenden  
und damit eine Trennung von Isotopen bzw. eine Anreicherung  
10 durchzuführen.

Im Hinblick auf die Brennstoffversorgung für Kernkraftwerke ist  
insbesondere die Anreicherung des Uranisotops U 235 von größtem  
Interesse, da die bisher durchgeführten Verfahren wie z.B. die  
15 Gasdiffusion äußerst kostspielig und technisch aufwendig sind.

Als Ausgangsstoff für die Uranisotopentrennung bzw. Anreicherung  
wurde bereits Urandampf vorgeschlagen, diese Verfahren sind  
jedoch wegen der benötigten sehr hohen Temperaturen über 2000°C  
20 technisch nur sehr schwierig durchzuführen. Von den Uranver-  
bindungen besitzt  $UF_6$  den höchsten Dampfdruck. Deshalb und da  
Fluor isotonenrein ist, wurde bereits vorgeschlagen, diese Ver-  
bindung unter Zuhilfenahme der Laserstrahlung isotopenselektiv  
anzuregen und anzureichern. Es sei dabei insbesondere auf die  
25 deutsche Offenlegungsschrift 2 311 584 verwiesen, die sich auf  
die Nutzung der durch das elektrische Feld der Strahlung indu-

zierten Moleküldipole bezieht. Diese isotopenspezifisch ange-  
regten Dipole eignen sich nicht nur für eine Abscheidung auf  
physikalischem Wege, sie stellen vielmehr auch Moleküle in  
einem angeregten Zustand dar, in welchem sie leichter befähigt  
5 sind, z.B. chemische Reaktionen mit zugeführten Reaktionspartnern  
auszuführen. Es hat sich aber herausgestellt, daß es verhältnis-  
mäßig schwierig ist, die gewünschte bzw. notwendig hohe Anre-  
gungsenergie zu erreichen, da die Rotationsschwingungsfrequenzen  
der Moleküle mit höheren Anregungsstufen sich in der Regel zu  
10 niedrigeren Frequenzen hin ändern und die Moleküle damit nicht  
mehr in der Lage sind, die anregende frequenzkonstante Strahlung  
im ursprünglichen Maß zu absorbieren. Dieses Schwingungsverhalten  
entspricht dem eines anharmonischen Oszillators.

15 Es stellte sich daher die Aufgabe, ein Anregungsverfahren zu  
finden, bei dem eine Frequenzverschiebung verhindert bzw. stark  
vermindert wird und der Anregungszustand im Prinzip sehr hoch  
bis über die Dissoziationsgrenze hinaus getrieben werden kann.

20 Diese Aufgabe wird erfindungsgemäß dadurch gelöst, daß das dampf-  
förmige Isotopengemisch in an sich bekannter Weise von einer  
Strahlung durchsetzt wird, deren Frequenz und Feldstärke so  
eingestellt wird, daß das Dipolmoment der anzuregenden Molekül-  
gruppe mindestens bei der Endamplitude hauptsächlich gegenphasig,  
25 die äquivalente Gruppe des anderen Isotops dagegen jedoch haupt-  
sächlich zum erregenden Feld schwingt.

Eine andere erfindungsgemäße Möglichkeit besteht darin, daß das  
dampfförmige Isotopengemisch in an sich bekannter Weise von einer  
30 Strahlung durchsetzt wird, deren Frequenz näher der Resonanz-  
frequenz der abzutrennenden Molekülgruppe als der äquivalenten  
Gruppe des anderen Isotops und in der Größenordnung des isotopen-  
bedingten Frequenzunterschiedes liegt und beide Molekülarten  
gegenphasig schwingen.

VPA 75 E 9361/62

709838/0028

Außerdem ergibt sich eine weitere ergänzende erfindungsgemäße Verfahrensführung dadurch, daß das dampfförmige Isotopengemisch in an sich bekannter Weise von der Strahlung durchsetzt wird, deren Frequenz so eingestellt ist, daß die Molekül- oder Atomdipole des selektiv anzuregenden Isotops hauptsächlich gegenphasig zum erregenden Feld der Strahlung schwingen und daß neben der Grundfrequenz der kohärenten Strahlung Oberwellen derselben in dem Maß eingestrahlt werden, daß eine Verlagerung der Eigenfrequenz der Dipole verhindert wird.

10

Zur weiteren Erläuterung dieser Erfindung sei nun zunächst auf die Fig. 1, 2 und 3 verwiesen, in denen die physikalischen Zusammenhänge grafisch dargestellt sind. Zwischen dem erregenden Wechselfeld der Laserstrahlung und der Schwingung des Moleküles (Dipolmoment) ergibt sich eine Phasendifferenz  $\psi$ , wie sie für den stationären Zustand in der Fig. 1 über  $\nu$  und in Fig. 2 über  $(\frac{\nu}{\nu_0} - 1)$  aufgetragen sind.  $\nu$  ist die erregende Frequenz,  $\nu_0$

15

die Resonanzfrequenz. Fig. 1 gilt für den harmonischen Oszillator, der als Grenzfall der in Betracht kommenden anharmonischen Oszillatoren (Fig. 2) für kleine Amplituden aufgefaßt werden kann.

20

Es ist daraus zu entnehmen, daß sich die Phasendifferenz zwischen dem erregenden Feld und dem erzeugten Dipolmoment bzw. der Dipolschwingung mit zunehmender Abweichung von der Eigenfrequenz  $\nu_0$  dem Wert  $-180^\circ$  nähert, wenn die Frequenz des erregenden Feldes geringfügig größer als die Eigenfrequenz  $\nu_0$  ist. Die Phasendifferenz nähert sich dagegen Null, wenn die Frequenz des erregenden Feldes  $\nu$  kleiner ist als die Resonanzfrequenz, dann handelt es sich um eine nahezu gleichphasige Schwingung. Entspricht dagegen die erregende Frequenz genau der Resonanzfrequenz, ergibt sich beim harmonischen Oszillator eine Phasenverschiebung der Dipolschwingung um  $90^\circ$ .

30

- 4 -

Die nach dieser Erfindung zu trennenden Molekülarten, bei denen das Produkt aus schwingender elektrischer Ladung und Stärke des inneren, rückführenden Feldes - als rückführende Kraft bezeichnet - weniger als proportional zum Dipolmoment zunimmt, werden als anharmonischer Oszillator aufgefaßt.

In Fig. 2 ist die Phasenverschiebung des stationären Zustandes eines derartigen anharmonischen Oszillators, bei dem also die rückführende Kraft weniger als proportional zur Amplitude zunimmt, auch für größere Amplituden bzw. Feldstärken der erregenden Frequenz über der relativen Abweichung von der Eigenfrequenz aufgetragen. Da die Abweichungen der Phasenverschiebung von  $\varphi = 0$  bzw.  $\varphi = -180^\circ$  so klein sind, daß sie innerhalb der Strichstärke liegen, wurde der Bereich in Nähe  $\varphi = 0^\circ$  in Feld a, der Bereich in Nähe  $\varphi = -180^\circ$  in Feld b vergrößert dargestellt. Die Abszissenskala gilt auch für die Kurvenscharen mit gespreizter Ordinatenkala in Feld a und b.

Man erkennt in Fig. 2, daß bei kleinen Feldstärken und beim Durchlauf der Kurven von links nach rechts (zunehmende Frequenz) der Übergang von der Gleichphasigkeit in die Gegenphasigkeit in einem sehr schmalen Frequenzbereich bei der Resonanzfrequenz  $\nu_0$  d.h.  $(\frac{\nu}{\nu_0} - 1) = 0$  stattfindet. Bei höheren Feldstärken

tritt Gegenphasigkeit schon bei kleineren Frequenzen auf, z.B. in dem in Fig. 2 dargestellten Falle bei  $E = 3 \cdot 10^5$  V/cm schon bei  $(\frac{\nu}{\nu_0} - 1) = -2 \cdot 10^{-3}$  d.h.  $\nu = 0,998 \nu_0$  (Phasenübergang

von Punkt  $a_1$  nach  $b_1$ ). Die gestrichelt gezeichneten Kurvenäste gehören zu instabilen Schwingungszuständen; sie sind nur eingezeichnet, um die Frequenz, bei der die Phasenumkehr eintritt, deutlich zu kennzeichnen.

VPA 75 E 9361/62

709838/0028



- 8 -

Nach der vorliegenden Erfindung wird nun das zu trennende Isotopengemisch mit einer kohärenten polarisierten elektromagnetischen Strahlung bestrahlt, deren Frequenz  $\nu$  so gewählt ist, daß bei einer bestimmten Feldstärke das Dipolmoment des anzuregenden Moleküls (Index 1) gegenphasig zum erregenden Feld schwingt. Dies ist nach Fig. 2 bei einer Feldstärke von  $3 \cdot 10^5$  V/cm der Fall, wenn die Frequenz  $\nu$  des erregenden elektrischen Feldes größer als  $0,998 \nu_{01}$  ist, welches einem Wert von  $(\frac{\nu}{\nu_{01}} - 1) = 0,002$  entspricht.

10

Für ein nicht anzuregendes Molekül (Index 2) mit höherer Resonanzfrequenz  $\nu_{02}$  ist  $(\frac{\nu}{\nu_{02}} - 1)$  kleiner - stärker negativ - als  $(\frac{\nu}{\nu_{01}} - 1)$ . Man kann also schon bei kleinen Unterschieden

15

in der Resonanzfrequenz durch geeignete Wahl der Frequenz und der Feldstärke z.B. erreichen, daß das Molekül 1 gegenphasig zum erregenden Feld schwingt, während das Molekül 2 gleichphasig schwingt. Die Folgen davon werden mit Hilfe der Fig. 3, 4, 5 und 6 erläutert.

20

Fig. 3 zeigt Potentialmulden für eine symmetrische Schwingung, hier also die potentielle Energie in Abhängigkeit vom Dipolmoment bzw. im Falle konstanter schwingender Ladung von der Schwingungsamplitude. Die gestrichelte Potentialmulde entspricht einem harmonischen Oszillator, die ausgezogene einem anharmonischen, bei dem die rückführende Kraft weniger als proportional mit dem Ausschlag zunimmt und der bei kleinen Schwingungsamplituden A nahezu mit dem harmonischen zusammen fällt. Die bei hohen Amplituden auftretende starke Verminderung der Schwingungsfrequenz wird durch die im Vergleich zum harmonischen Oszillator größere Verbreiterung dieser Potentialmulde verursacht. Dies ist die Folge der geringeren rückführenden Kraft.

25

30

- 4 - 9 .

Wird nun den Eigenfeldern des Moleküls ein Kraftfeld überlagert, welches die rückführenden Kräfte unterstützt, so entsteht eine engere Potentialmulde und damit eine Erhöhung der Resonanzfrequenz. Ein solches Kraftfeld stellt eine kohärente linear polarisierte elektromagnetische Welle geeigneter Frequenz und Phasenlage dar. Wird die eingestrahlte Frequenz so gewählt, daß das anzuregende Molekül im wesentlichen gegenphasig schwingt, so tritt eine Verstärkung der rückführenden Kräfte und damit eine Erhöhung der Resonanzfrequenz auf. Durch die Höhe der Feldstärke der Welle kann daher das Ausmaß der Frequenzkorrektur bestimmt und dadurch die bei hohen Amplituden auftretende Verminderung der Eigenfrequenz zumindest teilweise kompensiert werden. Man kann dadurch den Potentialverlauf, dem in Fig. 3 durch die gestrichelte Linie für den harmonischen Oszillator dargestellten, annähern. Schwingt das Molekül dagegen gleichphasig, so tritt bei einem derartigen anharmonischen Oszillator eine Verstärkung der Anharmonizitätseffekte auf.

Zur weiteren Erläuterung dieser Zusammenhänge sei nun auf die Fig. 4, 5 und 6 verwiesen. In Fig. 4 ist die Amplitude der stationären Dipolschwingung über der Frequenzskala ( $\frac{\nu}{\nu_0} - 1$ ) aufgetragen. Dabei stellt  $\nu_0$  die bei kleiner Feldstärke auftretende Resonanzfrequenz des anzuregenden Isotops und  $\nu$  die eingestrahlte Erregerfrequenz dar. Als Parameter für die Kurven wurden die eingetragenen Feldstärken in V/cm gewählt. Dabei entsprechen die auf der linken Seite eingezeichneten Kurvenäste, die in punktierte - nicht realisierbare - Abschnitte übergehen, Gleichphasigkeit zwischen Feldstärke des erregenden Feldes und dem Dipolmoment, jene von der rechten Seite kommenden Kurven jeweils gleicher Feldstärke Gegenphasigkeit - siehe dazu die in Fig. 2 vergrößert dargestellten Phasenverschiebungen in Feld a und b.

In Fig. 5 und 6 sind die Verhältnisse der nach der Dispersionstheorie für nur eine Resonanzfrequenz berechneten Extinktionskoeffizienten  $K$  über der relativen Abweichung  $(\frac{\nu}{\nu_{05}} - 1)$

von der für kleine Feldstärken gültigen Resonanzfrequenz  $\nu_{05}$

5 aufgetragen. Bekanntlich ist der Extinktionskoeffizient ein Maß für die Energieabsorption durch die Moleküle, also ihre Anregung. Aus dieser Darstellung ergeben sich, falls die Breite der benützten Absorptionsbande kleiner als der Isotopieeffekt  $\Delta\nu$  ist, zwei verschiedene Frequenzbereiche ( $\nu = \nu_{05}$  in  
10 Fig. 5 und  $\nu = 0,9988 \nu_{05}$  in Fig. 6) mit einer zur Isotopentrennung bzw. Anreicherung ausreichenden Selektivität der Anregung, die in den nachfolgenden Beispielen näher erläutert werden.

15 Für  $UF_6$  sind bei Raumtemperatur die Absorptionsbanden jedoch erheblich breiter, als der Isotopieeffekt  $\Delta\nu$ . Eine ausreichend selektive Anregung dieser Moleküle ist deshalb nicht ohne weiteres möglich. Deshalb wird die Temperatur soweit abgesenkt, bis einerseits zumindest die Q-Zweige der  
20 Rotationsschwingungsbanden genügend schmal geworden sind und andererseits die Überlappung, z.B. des Q-Zweiges des einen Isotops mit dem R-Zweig des anderen klein bleibt. Da der Dampfdruck des  $UF_6$  bei so tiefen Temperaturen zu klein ist um die für Wirtschaftlichkeit erforderlichen hohen Gasdurchsätze zu  
25 erreichen, wird die Temperatur, wie bereits in der Patentanmeldung P 24 47 762.1 beschrieben, durch adiabatische Entspannung abgesenkt und die Anregungsstrahlung an einer Stelle des expandierenden Gasstrahles eingestrahlt, an der die gewünschte  
30 Temperatur erreicht ist, eine störende Kondensation jedoch noch nicht stattgefunden hat. Wie in der erwähnten Patentanmeldung beschrieben, können dabei Zusatzgase zur Erhöhung des Adiabatenkoeffizienten, der Relaxationsgeschwindigkeit für die Vibration, als Reaktionspartner für chemische Reaktionen und auch zur Minderung des Resonanzenergieaustausches zugesetzt werden.

Außerdem kann die in der Patentanmeldung P 25 38 192.4 beschriebene Druckrückgewinnung zur Minderung des Kühl- bzw. Pumpaufwandes angewendet werden.

5 In den beiden folgenden Beispielen wird die Auswahl der günstigen Frequenzbereiche für das den Figuren 4, 5 und 6 zugrunde liegende vereinfachte Modell der  $\nu_3$  - Schwingung des  $UF_6$  gezeigt. Es werde im Q-Zweig der  $\nu_3$  - Schwingung des anzuregenden Moleküls, der gemäß Fig. 8 durch Abkühlung sehr schmal geworden  
10 ist, eingestrahlt mit einer Frequenzbandbreite, die einen wesentlichen Teil des betreffenden Q-Zweiges erfasst (der Einfluß der anderen Resonanzstellen sei zunächst außer Betracht).

I. Unterer Frequenzbereich:

15 Zunächst sei die Isotopenverbindung  $^{235}UF_6$  betrachtet. Die der Darstellung in Fig. 4 zugrunde liegende Frequenz  $\nu_0$  entspricht dann der  $\nu_3$  Resonanzfrequenz des  $^{235}UF_6$ . Bei einer Einstrahlungsfrequenz  $\nu$  entsprechend  $(\frac{\nu}{\nu_0} - 1) = -2,5 \cdot 10^{-3}$  und  
20 einer Feldstärke von  $3 \cdot 10^5$  V/cm ergibt sich eine Amplitude von 2,6 (Punkt  $c_1$ ). Entsprechend Fig. 2 herrscht dabei Gleichphasigkeit.

25 Da die Resonanzfrequenz  $\nu_0$  des  $^{238}UF_6$  um etwa 1 % kleiner ist, liegt bei gleich eingestrahelter Frequenz  $\nu$  der Wert  $\frac{\nu}{\nu_0} - 1$  bei etwa  $-1,5 \cdot 10^{-3}$ . Bei anwachsenden Feldstärken  
30 schwingen beide Molekülarten zunächst mit relativ kleiner Amplitude. Ist jedoch die Feldstärke von  $3 \cdot 10^5$  nahezu erreicht, so steigt die Amplitude des  $^{238}UF_6$  auf höhere Werte, während die Amplitude des  $^{235}UF_6$  noch relativ klein bleibt. Letztere erreicht dabei etwa den Wert von 2,6, während die  
35 des  $^{238}UF_6$  bei 6,7 liegt (Punkt  $c_2$ ). Die Schwingungsenergie dieser Moleküle ist dabei dann mehr als 6mal so groß als die der  $^{235}UF_6$  Moleküle. Dieser große Unterschied im Anregungs-

- 0 -  
- 17 -

zustand ermöglicht dann auch z.B. eine selektive chemische  
Reaktion des stärker angeregten Moleküles mit einem  
Reaktionspartner und damit letztlich die Abtrennung der  
238 U enthaltenden Moleküle aus dem anfänglichen Isotopenge-  
misch, das dann die 235 UF<sub>6</sub> Moleküle in angereicherter Form  
enthält. Die beschriebene Amplitudensteigerung des 238 UF<sub>6</sub>  
ist entsprechend Fig. 2 mit einem Übergang in die Gegen-  
phasigkeit verbunden, die eine Abwanderung der Resonanzfre-  
quenz bei höheren Anregungsstufen verhindert bzw. entgegen-  
wirkt und damit die genannten hohen Schwingungsamplituden  
ermöglicht.

In diesem Beispiel schwingt also das 235 UF<sub>6</sub> mit zunehmender  
Feldstärke bis zum Wert  $3 \cdot 10^5$  dauernd im wesentlichen gleich-  
phasig zum erregenden Feld. Die Anharmonizität des inneren  
moleküleigenen Feldes wird durch das äußere Feld verstärkt.  
Dagegen schwingt das 238 UF<sub>6</sub> nur bis zu jener Feldstärke  
gleichphasig, deren senkrechter Kurvenast im negativen  
Abszissenbereich der Fig. 4 den der Einstrahlungsfrequenz  
entsprechenden Wert ( $\frac{\nu}{\nu_0} - 1$ ) tangiert. Bei steigender Feld-  
stärke tritt von diesem Punkt an Gegenphasigkeit zum er-  
regenden Feld auf, es gelten dann die aus dem positiven  
Abszissenbereich kommenden Kurven. Die Anharmonizität des  
inneren Feldes wird dann durch das äußere Feld vermindert  
bzw. aufgehoben. Dies erklärt, wie bereits erwähnt, die  
im letzteren Falle höhere Amplitude bzw. Schwingungsenergie  
des Moleküles. Würde man jedoch ohne Frequenzänderung die  
Feldstärke der eingestrahlten Welle weiter steigern, so würde  
auch das 235 UF<sub>6</sub> gegenphasig zum erregenden Feld schwingen  
und sogar mit einer etwas höheren Amplitude als das 238 UF<sub>6</sub>.  
Diese Amplitudenunterschiede sind jedoch wesentlich  
kleiner, so daß die Selektivität nicht mehr in dem vorher-  
genannten Maß gegeben ist. Hieraus geht hervor, daß es  
wesentlich ist, die Feldstärke der erregenden Welle nicht  
zu klein aber auch nicht zu groß zu wählen.

II. Oberer Frequenzbereich: 13.

Dieser Fall ist deutlich bei einer Feldstärke von  $3 \cdot 10^4$  V/cm in Fig. 4. Strahlt man in diesem Beispiel mit einer Frequenz entsprechend  $\frac{\nu}{\nu_0} - 1 = 0$  ein, wobei  $\nu_0$

5 die Resonanzfrequenz der Isotopenverbindung  $^{235}\text{UF}_6$  darstellt, so ergibt sich für die Moleküle dieser Verbindung eine Amplitude von 3 (Punkt  $d_1$ ). Die gleiche Frequenz ergibt für die Isotopenverbindung  $^{238}\text{UF}_6$  einen Wert von  $\frac{\nu}{\nu_0} - 1 = 1 \cdot 10^{-3}$  mit einer zugehörigen Amplitude von  
10 0,6 (Punkt  $d_2$ ). Im Gegensatz zum vorhergehenden Beispiel ist hier die Schwingungsenergie der  $^{235}\text{UF}_6$  Moleküle erheblich größer als jene der  $^{238}\text{UF}_6$  Moleküle. Beide Molekülarten schwingen dabei im wesentlichen gegenphasig. Der Unterschied in den Amplituden bzw. der Energie in dem  
15 stationären Zustand kommt hier dadurch zustande, daß die eingestrahlte Frequenz der Resonanzfrequenz des  $^{238}\text{UF}_6$  ferner als jener des  $^{235}\text{UF}_6$  liegt.

Bei größeren Feldstärken und gleicher Frequenz erreichen  
20 beide Molekülarten infolge der durch die Gegenphasigkeit erreichten Kompensation der Anharmonizität erheblich höhere Amplituden. Der relative Unterschied derselben wird dabei allerdings kleiner.

25 Der in beiden Beispielen auftretende Nachteil, daß bei sehr hohen Feldstärken die Selektivität der Anregung abnimmt, kann durch eine spezielle Impulsformung gemäß Fig. 7 gemildert werden. Dabei werden die Moleküle zunächst in einer dauernd wirkenden elektromagnetischen Strahlung oder im ersten Teil  
30 eines Impulses einer Feldstärke ausgesetzt, bei der noch eine ausreichende Selektivität vorhanden ist (z.B.  $3 \cdot 10^4$  V/cm), solange bis die Moleküle die zugehörige Anregungsenergie aufgenommen haben (z.B.  $10^{-9}$  bis  $10^{-8}$  sek). Dann wird die Feld-

stärke für eine kurze Zeit stark erhöht, so daß für die Molekülart mit der höheren Anregung im ersten Teil des Impulses Dissoziation eintritt. Erhöhung der Feldstärke und deren Zeitdauer werden so bemessen, daß vorwiegend die Moleküle mit der  
5 zunächst höheren Anregungsenergie dissoziieren. Für die Dissoziation der Moleküle mit der zunächst niedrigeren Ausgangsenergie reicht dann die Zeit der erhöhten Feldstärke - Größenordnung ca.  $10^{-11}$  sek - zur Aufnahme ausreichender Energie nicht aus.

10

Dadurch kann der bei hohen Feldstärken auftretende Verlust an Selektivität wenigstens teilweise vermieden werden.

15

Voraussetzung für die volle Wirkung der geschilderten Maßnahmen ist, daß vor Erreichung des Endzustandes keine Störung, z.B. durch einen Stoß, eintritt. Ist jedoch der Endzustand, d.h. eine hohe Amplitude erreicht, so kann die Dissoziation bzw. chemische Reaktion erleichtert werden, wenn eine Störung hervorgerufen wird, die wenigstens kurzzeitig zu einer Minderung der  
20 Gegenphasigkeit bzw. sogar zur Gleichphasigkeit führt. In diesem Fall unterstützt das äußere Feld die Bindung zwischen den schwingenden Teilen nicht mehr so stark und schwächt dieses sogar im Fall der Gleichphasigkeit. Für ein schwingendes System mit einer Potentialmulde nach Fig. 3 bedeutet dieses, daß die  
25 Potentialmulde flacher wird, wie es die strichpunktierte Linie zeigt. Diese Störung der Schwingung kann z.B. durch ein anderes Molekül hervorgerufen werden. Dazu wird der Druck so eingestellt, daß die mittlere Zeit zwischen zwei Störungen eines angeregten Moleküles größer ist als seine Anregungszeit und kleiner  
30 oder gleich der Aufenthaltsdauer im Feld der Erregerwelle ist.

35

Eine Störung der stabilen Schwingung ist jedoch auch durch andere Mittel möglich, wie z.B. eine merkliche Leistungsänderung innerhalb einer Schwingungsperiode der Strahlung oder durch einen  
zusätzlichen Fremdimpuls, oder durch die über die Rotationstemperatur beeinflussbare Rotation.

- 22 -  
15

Aus dem Gesagten geht hervor, daß für die Kompensation der Anharmonizität bei hohen Amplituden eine große Feldstärke notwendig ist, wobei jedoch für die Kompensation selbst dem Feld keine Energie entzogen wird. Derartige Feldstärken lassen sich durch Fokussierung in einem Resonator erzeugen. Bei einem idealen, d.h. verlustlosen Resonator wäre keine zusätzliche Energie zur Erzielung dieser hohen Feldstärken aufzuwenden. Tatsächlich lassen sich jedoch Resonatorverluste nicht vermeiden und sollten so gering als irgend möglich gehalten werden.

5  
10

In Anbetracht der benötigten hohen Feldstärken der erregenden Strahlung empfiehlt sich ein Arbeiten im Impulsbetrieb.

Das benutzte Modell mit nur einer Resonanzfrequenz ist ein Spezialfall der klassischen Dispersionstheorie. Es wurde benutzt, um das Grundprinzip der Beeinflussung der Anharmonizität durch das äußere Feld einfach erläutern zu können. Im allgemeinen besitzen die Moleküle mehrere Resonanzfrequenzen, deren Anregung mit einer Änderung des Dipolmomentes verbunden ist und die also durch Strahlung anregbar sind. In diesem Fall ergeben sich Amplitude und Phase der resultierenden Schwingung bzw. des Dipolmomentes eines Moleküls oder Atoms z.B. aus der allgemeinen Form der klassischen Dispersionstheorie durch phasenrichtige Summation der Beiträge aller Resonanzfrequenzen. Diese wird nun wieder benutzt um die gemäß der Erfindung für eine selektive Anregung geeignete Auswahl von Anregungsfrequenz, Feldstärke und Rotationstemperatur anhand des  $UF_6$ -Moleküles zu erläutern.

15  
20  
25

Das Maximum der Verteilung einer großen Zahl von  $UF_6$ -Molekülen über die verschiedenen Rotationsquantenzahlen  $J$  liegt selbst bei einer Rotationstemperatur von 20 K, wie sie durch adiabatische Abkühlung erreicht werden kann, noch bei etwa der Rotationsquantenzahl  $J = 15$ . Es kommen also in dieser Gasmenge noch viele Molekülgruppen, die sich durch die Rotationsquantenzahlen  $J$  unter-

30  
35



scheiden, mit einer durch die Verteilungsfunktion gegebenen Häufigkeit vor. Die Moleküle einer dieser Gruppen haben bei einem Schwingungsübergang aufgrund der Auswahlregeln drei Übergangsmöglichkeiten von großer Wahrscheinlichkeit. Diese  
 5 entsprechen einer Änderung der Rotationsquantenzahl um  $-1,0$  und  $+1$  und werden im Absorptionsspektrum bekanntlich als P-, Q- und R-Zweige bezeichnet. In der klassischen Dispersionstheorie entspricht jedem dieser Übergänge eine Resonanzfrequenz des Moleküls und die Gesamtamplitude der Schwingung des Moleküls  
 10 ergibt sich entsprechend der Dispersionstheorie durch phasenrichtige Summation der Beiträge der verschiedenen Resonanzfrequenzen unter Berücksichtigung der Oszillatorenstärke.

Resonanzfrequenzen, die sehr verschieden sind von der eingestrahlten Frequenz oder solche, mit sehr viel kleinerer Oszillatorenstärke (kleinerer Übergangswahrscheinlichkeit) haben nur geringen Einfluß und können deshalb von der Summation vernachlässigt werden.

Da, wie in Fig. 2 gezeigt ist, in den interessierenden Frequenzbereichen die Amplitudenbeiträge der Resonanzfrequenzen nahezu gleich- oder gegenphasig zum erregenden Wechselfeld sind, kann durch geeignete Frequenzwahl für eine Molekülart nahezu Kompensation der Amplitudenbeiträge der verschiedenen Resonanzstellen  
 5 erreicht werden, während bei der gleichen Frequenz ein Molekül des anderen Isotops eine relativ große Amplitude besitzt. Man erzielt also dadurch eine hohe Selektivität der Anregung.

Am Beispiel der  $\nu_3$ -Schwingung des  $UF_6$  wird mittels der Fig. 8, 9 und 10 gezeigt, wie die Anregungsfrequenz und Gastemperatur am Bestrahlungsort geeignet gewählt werden. Die Kurven sollen prinzipielle Merkmale der Erfindung aufzeigen.

In Fig. 8 ist die Häufigkeitsverteilung der  $UF_6$ -Moleküle auf die  
 35 verschiedenen Rotationszustände bei einer Rotationstemperatur von 20 K und sehr kleiner Feldstärke ( $< 1$  V/cm) über  $(\frac{\nu}{\nu_{08}} - 1)$

für P-, Q- und R-Zweig der  $\nu_3$ -Schwingung des  $^{238}\text{UF}_6$  und  $^{235}\text{UF}_6$  aufgetragen. Dabei bedeutet  $\nu_{\text{Q8}}$  die Resonanzfrequenz im Q-Zweig-Maximum des  $^{238}\text{UF}_6$ . Außerdem ist angenommen, daß die Übergangswahrscheinlichkeiten in den drei Zweigen nicht sehr  
5 verschieden sind. Für die Gruppen der Moleküle, die im Maximum der Verteilungskurven in Fig. 8 liegen, also diejenigen mit der Rotationsquantenzahl etwa  $J = 15$ , zeigt die Fig. 9 das Amplitudenverhältnis  $A_8/A_5$  der  $^{238}\text{UF}_6$ -Moleküle zu den  $^{235}\text{UF}_6$ -Molekülen, Fig. 10 die Amplitude  $A_8$  der  $^{238}\text{UF}_6$ -Moleküle jeweils in will-  
10 kürlichem Maßstab im stationären Zustand und bei einer Feldstärke von  $3 \cdot 10^4$  V/cm.

Wird z.B. mit einer Strahlung der Frequenz  $\nu$  entsprechend  $(\frac{\nu}{\nu_{\text{Q8}}} - 1) = -0,3 \cdot 10^{-3}$  mit einer Bandbreite, die der Bandbreite  
15 dieser Gruppe im Q-Zweig entspricht, angeregt, so entnimmt man aus den Fig. 9 und 10 für eine Feldstärke von  $3 \cdot 10^4$  V/cm etwa die Werte  $A_8/A_5 = 26$  und  $A_8 = 1,3$ . Fig. 9 zeigt also, daß bei dieser Wahl der Einstrahlungsfrequenz und ihrer Bandbreite die abzutrennenden Moleküle  $^{238}\text{UF}_6$  eine 26-fach größere  
20 Amplitude besitzen als äquivalente Moleküle (solche mit  $J = 15$ ) der nicht abzutrennenden Art. Wählt man also im Fall der Abtrennung durch chemische Reaktion einen Reaktionspartner, für den eine Aktivierungsenergie gleich oder wenig kleiner als die Anregungsenergie des  $^{238}\text{UF}_6$ , jedoch größer als die Anregungs-  
25 energie des  $^{235}\text{UF}_6$  benötigt wird, so erzielt man eine hohe Selektivität der Trennung.

Große Amplitudenverhältnisse und Amplituden erzielt man auch bei  $(\frac{\nu}{\nu_{\text{Q8}}} - 1) = 2,5 \cdot 10^{-3}$  und  $-2,9 \cdot 10^{-3}$ , jedoch erfaßt das einge-  
30 strahlte Frequenzband nur relativ wenig Moleküle direkt, siehe Fig. 8, d.h. ohne daß weitere Moleküle z.B. durch Stöße in diesen Frequenzbereich überführt werden.

Analog kann man zur Bestimmung der günstigsten Frequenzen zur  
35 Abtrennung des  $^{235}\text{UF}_6$  die Kurven für  $A_5/A_8$  und  $A_5$  aufzeichnen.

709838/0028

VPA 75 E 9361/62

- Man erreicht also hohe Selektivität einerseits dadurch, daß bei Vermeidung vieler Stöße im Bereich der Strahlung die Zahl der Moleküle mit gleicher Resonanzfrequenz bei beiden Isotopen sehr verschieden ist und andererseits dadurch, daß die Häufungsstellen von Molekülen des Isotops mit unerwünschter Anregung, z.B. Q-Zweig, gleichphasig schwingen und/oder ihre Resonanzfrequenz weiter weg von der Anregungsfrequenz als die der nicht anzuregenden Molekülart liegt.
- 10 Mit zunehmender Feldstärke werden die günstigen Einstrahlungsfrequenzen kleiner. In den Fig. 11 und 12 sind Amplitudenverhältnis  $A_8 : A_5$  und Amplitude  $A_8$  für eine Feldstärke von  $3 \cdot 10^5$  V/cm aufgetragen. Man entnimmt hieraus, daß eine Frequenz entsprechend  $(\frac{\nu}{\nu_{Q8}} - 1) = -1,3 \cdot 10^{-3}$  günstig ist.
- 15 Wie ein Vergleich mit den Fig. 9 und 10 zeigt, ist diese Frequenz jedoch für eine Feldstärke von  $3 \cdot 10^4$  V/cm ungeeignet. Amplitudenverhältnis  $A_8 : A_5$  und Amplitude  $A_8$  sind sehr klein und es wird im Gegensatz zur höheren Feldstärke das  $235 \text{ UF}_6$  sogar etwas stärker angeregt. Die Ursache für die bei dieser Frequenz kleiner Amplitude  $A_8$  bei der Feldstärke von  $3 \cdot 10^4$  V/cm ist, daß in diesem Fall auch das Dipolmoment des  $238 \text{ UF}_6$  gleichphasig schwingt. Hält man also die für hohe Feldstärken günstig gewählte Frequenz konstant, dann setzt die unerwünschte Anregung erst dann ein, wenn eine genügend hohe Feldstärke erreicht ist. Eine für die selektive Anregung günstige Frequenz ist also hier nur in Verbindung mit der zugehörigen Feldstärke definiert. Man kann diesen bei hohen Feldstärken auftretenden Nachteil dadurch vermeiden, daß man zusätzlich gemäß der Erfindung die Frequenz in der Weise nachführt, daß bei der erreichten Feldstärke am Ort des betrachteten Moleküls für die selektiv anzuregende Molekülart die beschriebenen optimalen Bedingungen: großes Amplitudenverhältnis und große Amplitude für den stationären Zustand während des Hauptteiles der Anregungszeit bestehen.

Im genannten Beispiel muß also die Frequenz bei der Feldstärke  $3 \cdot 10^4$  V/cm den Wert  $(\frac{\nu}{\nu_{Q8}} - 1) = -0,3 \cdot 10^{-3}$ , bei der Feldstärke  $3 \cdot 10^5$  V/cm dem Wert  $(\frac{\nu}{\nu_{Q8}} - 1) = -1,3 \cdot 10^{-3}$  entsprechen, wenn  $238 \text{ UF}_6$  angeregt werden soll.

5

Für die Frequenzänderung der Laserstrahlung, die zur Nachführung benutzt werden kann, sind verschiedene Verfahren bekannt. Wir die Strahlung z.B. durch Frequenzmischung in einem Kristall erzeugt, so ändert sich die Frequenz bei Änderung der Gitterabstände. Eine solche Änderung kann durch örtliche Erwärmung infolge gesteuerter absorbierter Strahlung oder durch Druckänderung, z.B. durch Piezoquarze erreicht werden.

10

Die für die Molekülgruppe mit der Rotationsquantenzahl  $J = 15$  durchgeführten Überlegungen gelten analog auch für die übrigen Molekülgruppen mit anderen  $J$ -Werten. Aus der Zusammenschau der für die verschiedenen Molekülgruppen ermittelten Verhältnisse ergibt sich zur Erfassung des Hauptteiles der anzuregenden Moleküle bei einer Rotationstemperatur von 20 K und einer Feldstärke von  $3 \cdot 10^4$  V/cm z.B. eine mittlere Anregungsfrequenz entsprechend  $(\frac{\nu}{\nu_{Q8}} - 1) = -0,15 \cdot 10^{-3}$ , bei einer Bandbreite entsprechend  $\frac{\Delta \nu}{\nu_{Q8}} = 0,48 \cdot 10^{-3}$  ( $\nu = 0,9 \cdot 10^{10} \text{ sek}^{-1}$ ).

15

20

25

Für diese Werte entnimmt man aus Fig. 8, daß infolge der starken Verschmälerung des Q-Zweiges durch Abkühlung nahezu der gesamte Q-Zweig und damit nahezu alle Moleküle des  $238 \text{ UF}_6$  von der Strahlung erfaßt werden, während nur ein sehr kleiner Teil des  $235 \text{ UF}_6$  (hauptsächlich aus dem P-Zweig) im Frequenzbereich der Strahlung liegt.

30

Dies führt zu hoher Selektivität der Anregung. Dabei ist jedoch darauf zu achten, daß die Stoßzahl pro Molekül im angeregten Zustand nicht so groß ist, daß die durch die Abtrennung ge-

- 17 20.

schaffen Lücken in der Verteilungskurve der nicht anzuregenden Moleküle so oft durch Stöße wieder aufgefüllt werden, daß schließlich auch diese Moleküle zum großen Teil abgetrennt werden.

5

Neben bzw. anstatt der bisher erwähnten Häufungsstellen von Resonanzfrequenzen im Q-Zweig, können auch Häufungen in anderen Zweigen auftreten, z.B. an Kanten des R- bzw. P-Zweiges. Auch an diesen Stellen ist das Verfahren anwendbar. Es sind dann die  
10 Temperaturen (Rotationstemperatur und Vibrationstemperatur) am Bestrahlungsort wieder so einzustellen, daß die Häufung möglichst ausgeprägt und die Überlappung der Banden beider Isotope im Frequenzbereich der Strahlung klein ist.

15 Bei Einstrahlung nur einer Erregerfrequenz kann zwar z.B. für das Zeitmittel über eine Periode im Fall der Gegenphasigkeit eine Kompensation erreicht werden, im allgemeinen, d.h. bei beliebigem Eigenfeld der Moleküle jedoch nicht für jedes Zeitintervall innerhalb einer Periode. Dies wird besonders deutlich  
20 im Falle einer unsymmetrischen Schwingung. Die zugehörige Potentialmulde ist dann, wie in Fig. 13 schematisch dargestellt, auch unsymmetrisch.

Eine solche Potentialmulde ist z.B. bei der Schwingung eines  
25 zweiatomigen Moleküls vorhanden. In diesem Fall kann durch Zuzumischen von Oberwellen zur Resonanzfrequenz eine Kompensation der Anharmonizitätseffekte erreicht werden, wie es auch aus Fig. 13 zu ersehen ist. Der zeitliche Verlauf des elektrischen Feldes dieser Frequenz (ausgezogene Kurve) sowie der ersten  
30 Oberwelle (unterbrochene Kurve) sind unterhalb der Potentialmulde dargestellt. Hieraus ist zu ersehen, daß das elektrische Feld der Oberwelle als Rückstellkraft wirkt, siehe die Punkte mit dem Pfeil in dem oberen Teil der Fig. 5. Diese "Korrekturstrahlung" kann in einfacher Weise durch die Einbringung optisch nicht  
35 linearer Medien in den Strahlengang der Laserstrahlung erfolgen.

- 18 -  
- 94.

Eine andere Möglichkeit ist die "Fremdzumischung" der Oberschwingung, also die Erzeugung derselben, z.B. durch ein eigenes Lasersystem.

- 5 Diese Korrektur des Potentialverlaufes zur Annäherung an eine harmonische Schwingung kann grundsätzlich durch die Zumischung von weiteren Oberschwingungen verbessert werden, d.h. daß das Prozeßmedium, also das Isotopengemisch mit einer Grundfrequenz und ihren Oberschwingungen bestrahlt werden sollte, wobei die  
10 Grundfrequenz selektiv auf das abzutrennende Isotop bzw. die abzutrennende Isotopenverbindung eingestellt ist.

Das Verfahren kann auch auf Elektronenübergänge und auf solche mit Rotationsschwingungsübergängen angewendet werden. Dann liegt  
15 die Frequenz der Anregungsstrahlung bei wesentlich höheren Werten, z.B. im sichtbaren oder ultravioletten Bereich.

Ist nach dem beschriebenen Verfahren selektiv eine Anregung erreicht, so kann auch durch eine zusätzliche elektromagnetische  
20 Strahlung anderer Frequenz eine noch stärkere Anregung erzielt werden.

10 Patentansprüche

13 Figuren

22  
Leerseite

2609205  
 . 24.

Nummer:  
 Int. Cl.2:  
 Anmeldetag:  
 Offenlegungstag:

26 09 205  
 B 01 D 59/00  
 5. März 1976  
 22. September 1977

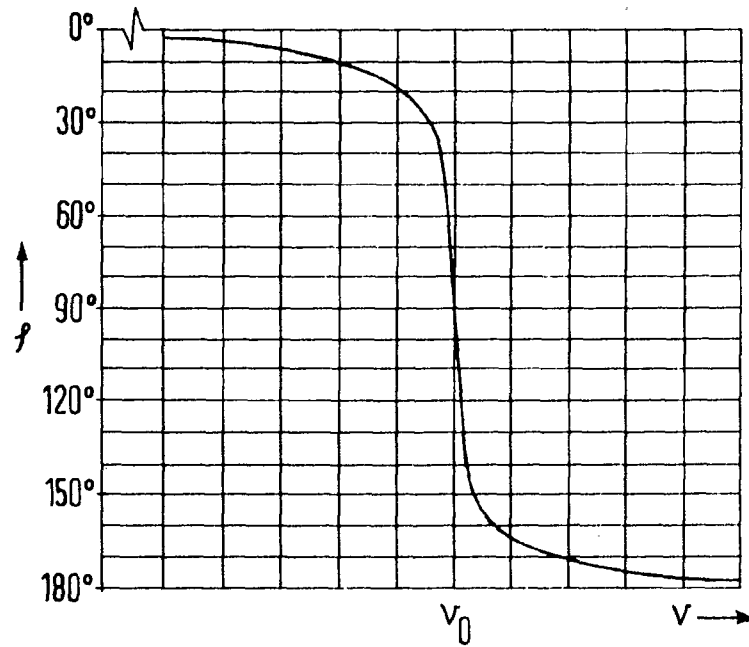


Fig.1

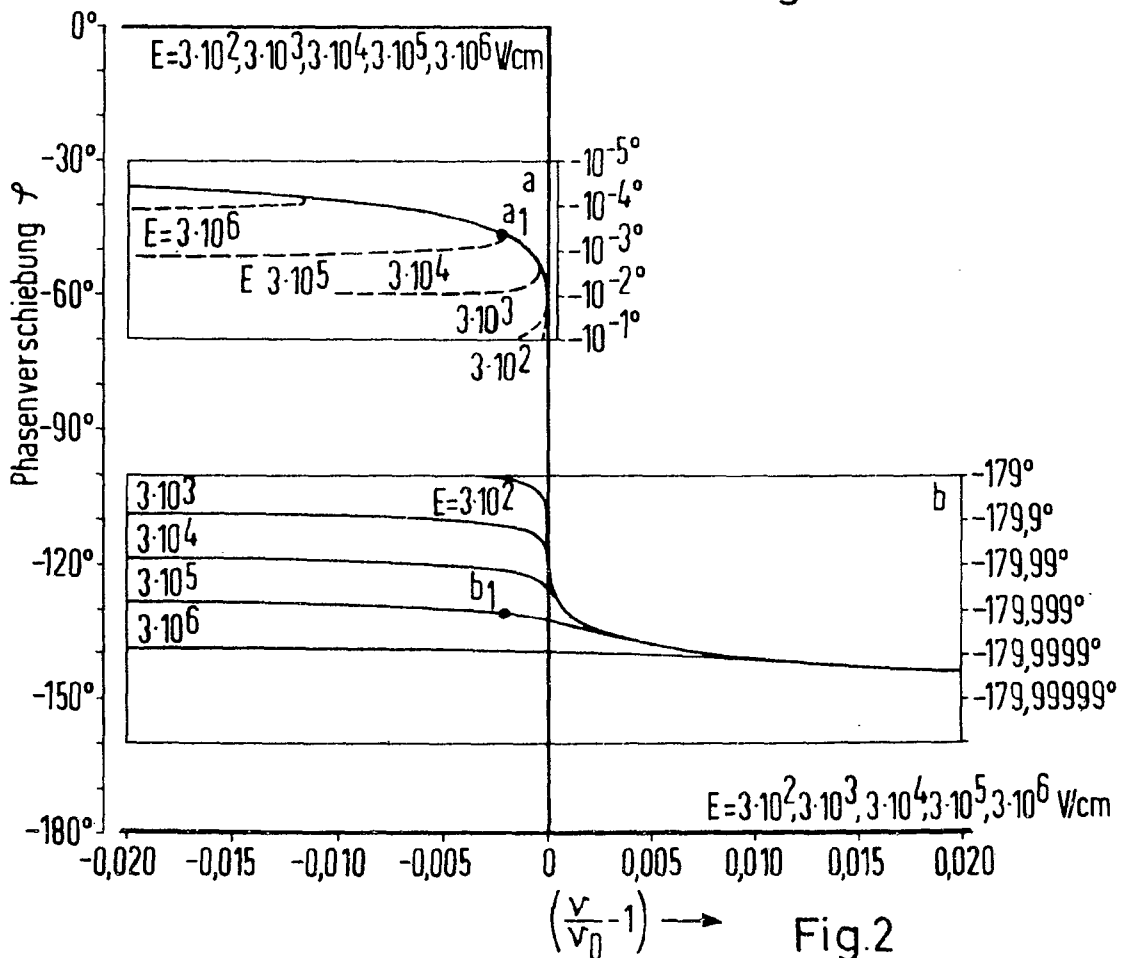


Fig.2

709838/0028



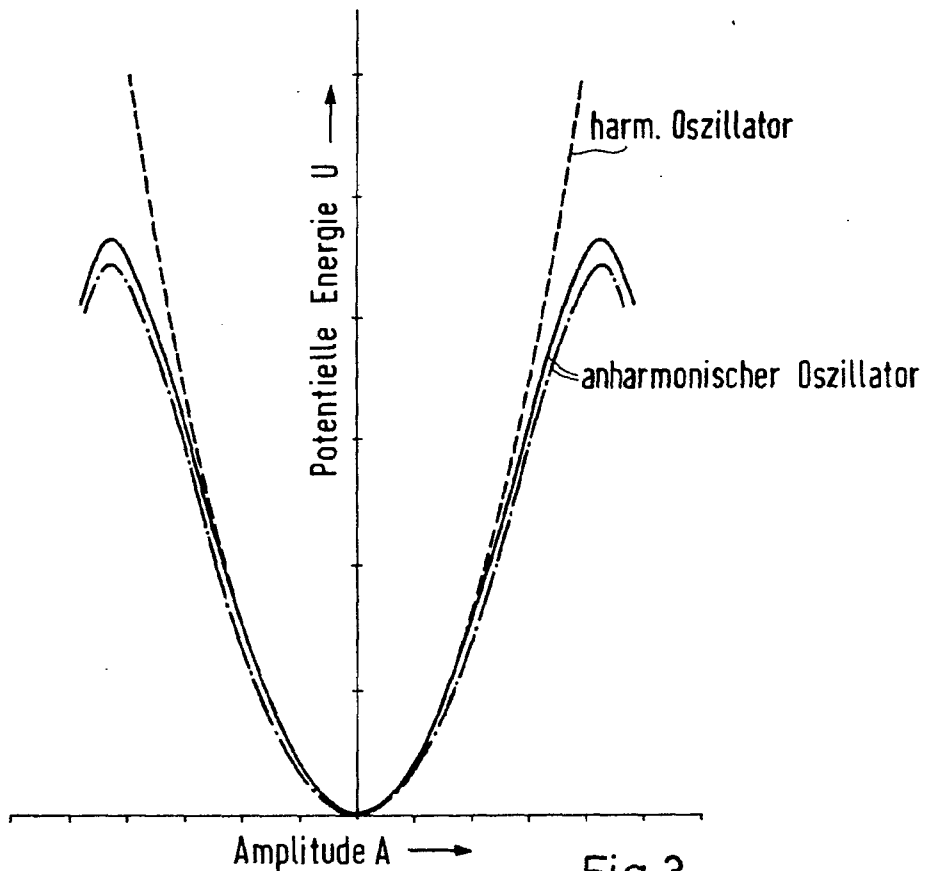


Fig. 3

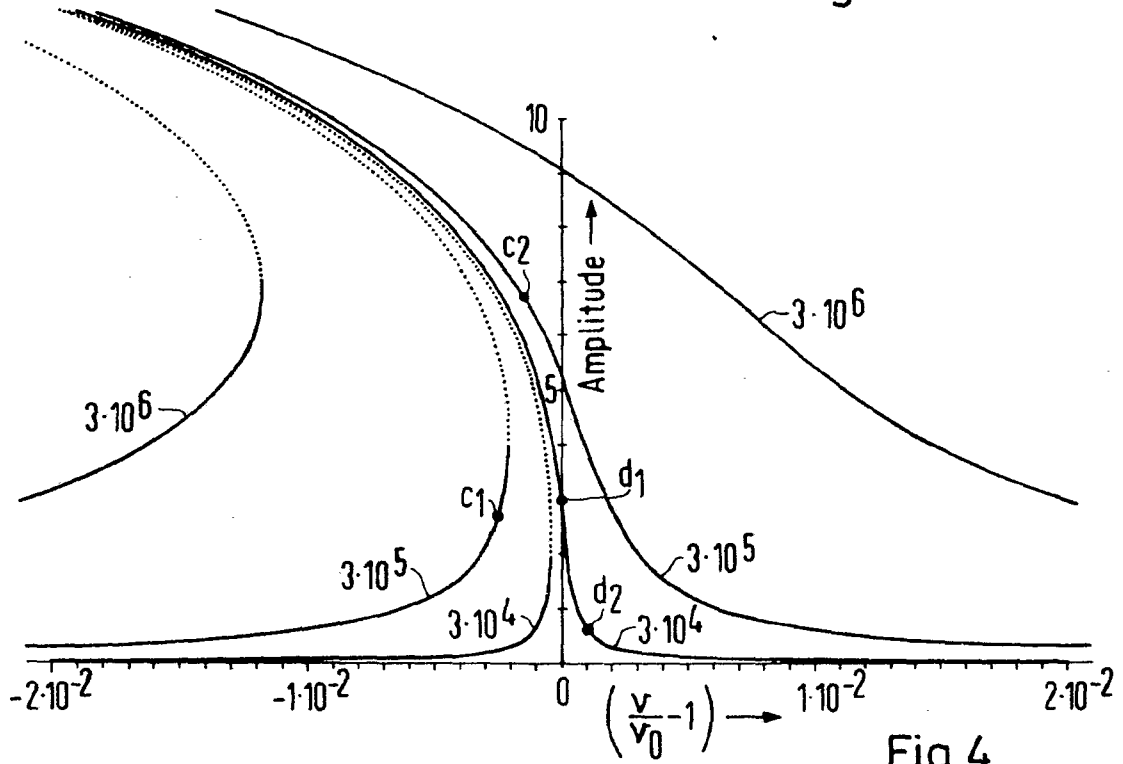
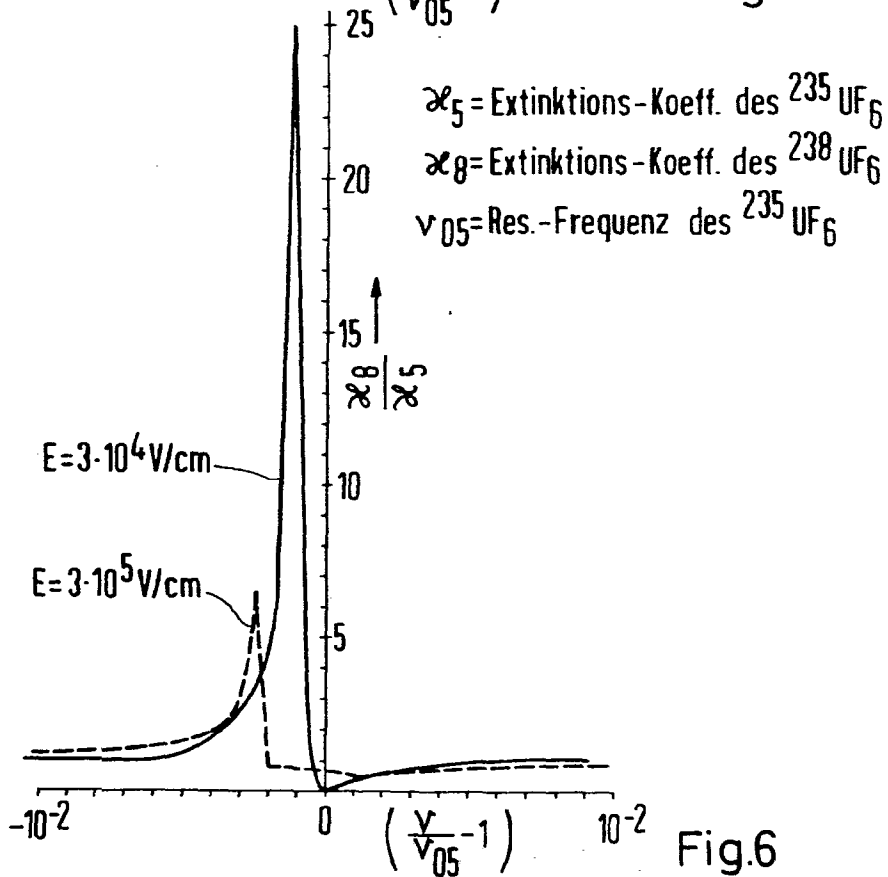
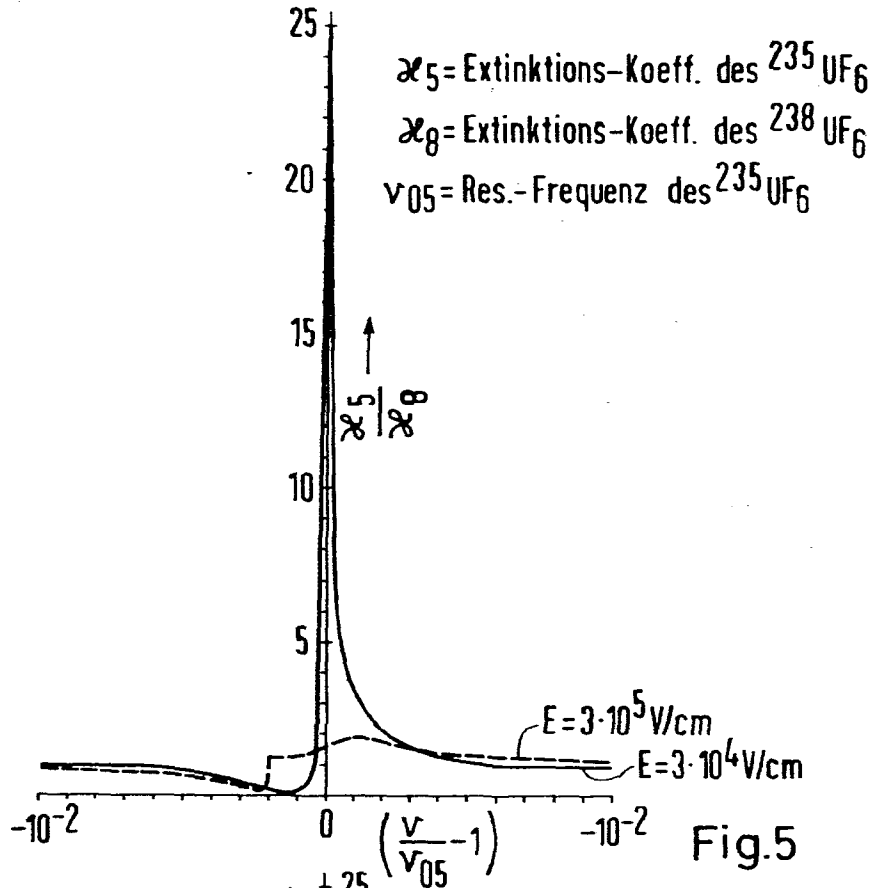


Fig. 4

2609205

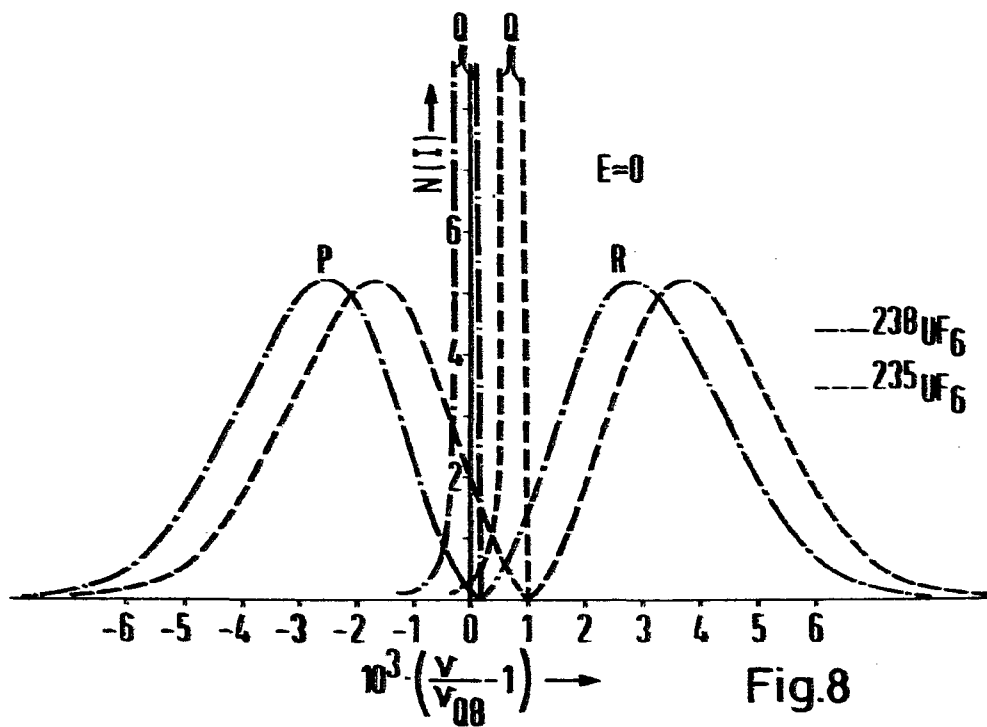
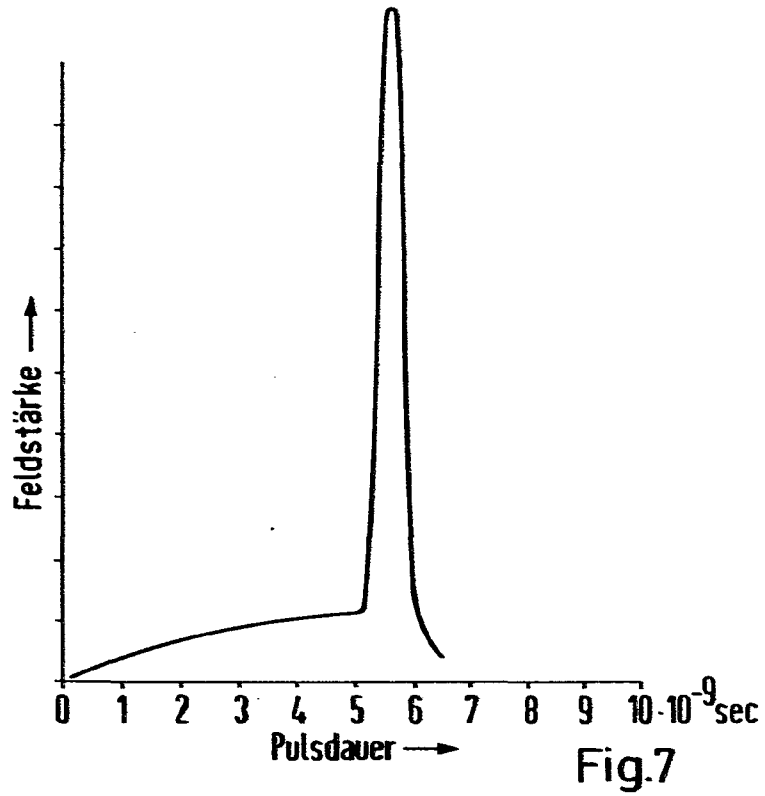
. 24.



709838/0028

2609205

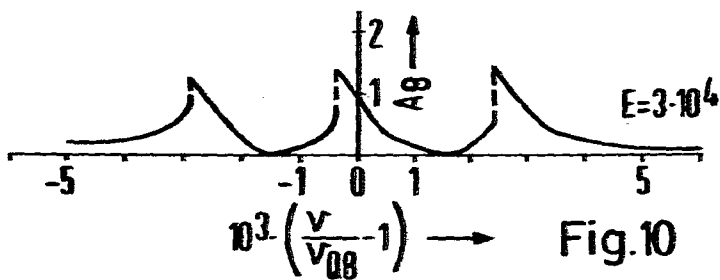
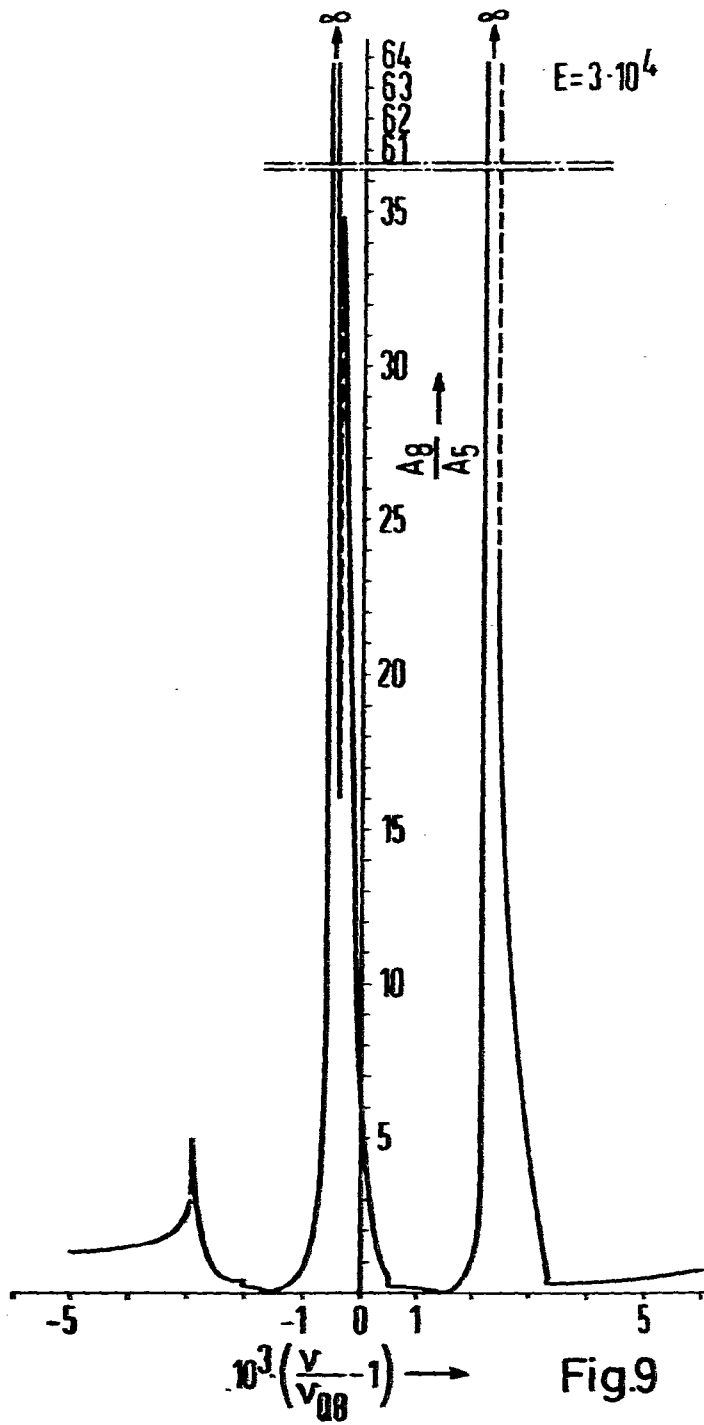
25



709838/0028

2609205

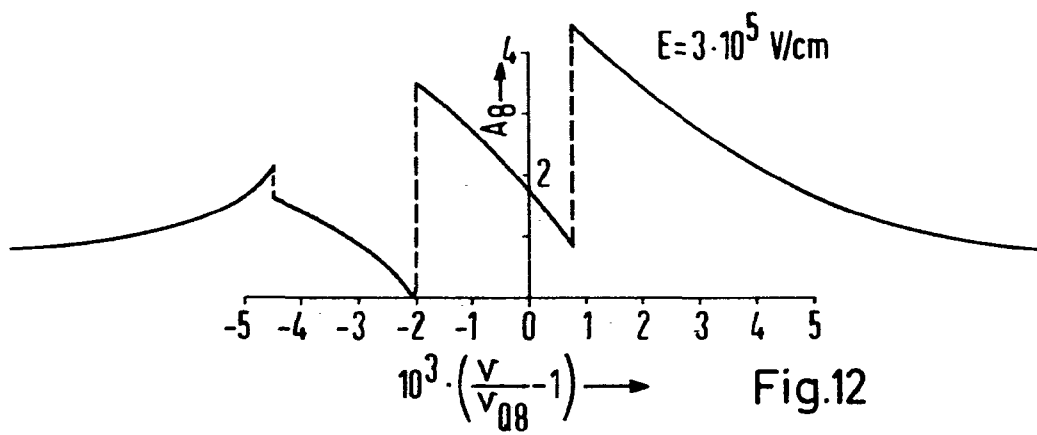
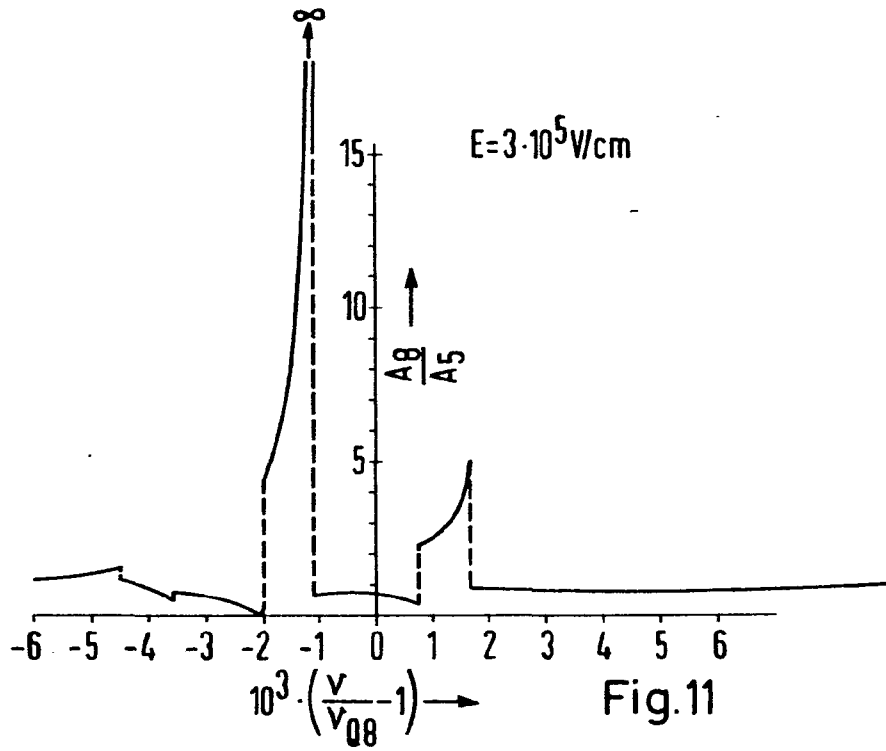
- 26.



709838/0028

2609205

- 27.



709838/0028

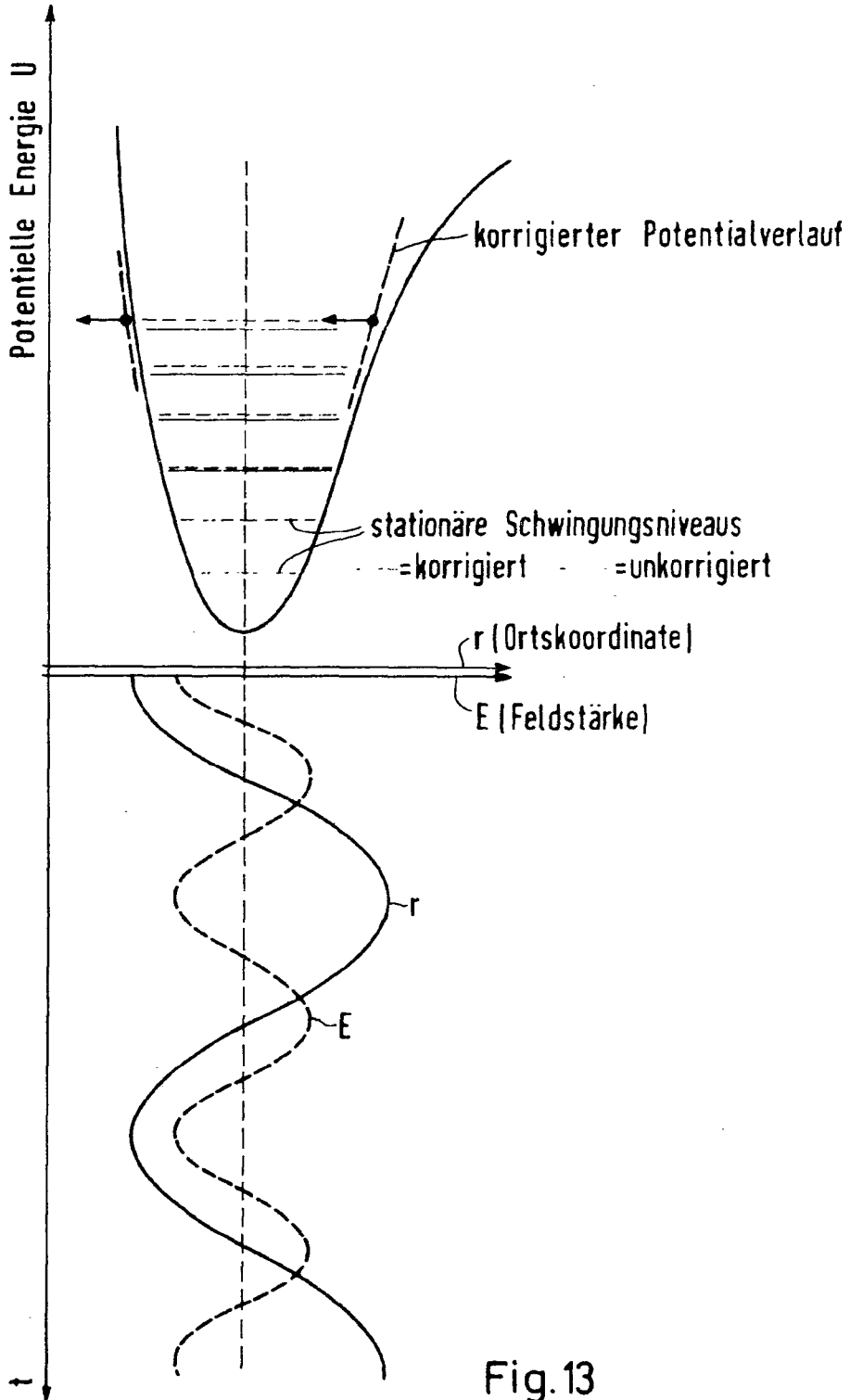


Fig.13