

MEDIDA DE DESVIO ISOTÓPICO E ESTRUTURA HIPERFINA DO URÂNIO UTILIZANDO IMOGS

F C Cruz¹, M G Destro², A Mirage³, D Pereira¹, A Scalabrin¹ e C Schwab²
1 - UNICAMP/IFGW; 2 - CTA/IEAv; 3 - IPEN/CNEN

Desvios na frequência de absorção de isótopos diferentes, permitem que um dado isótopo seja excitado seletivamente por um feixe de luz monocromática. No caso do urânio, se uma mistura dos isótopos ^{235}U e ^{238}U for irradiada por um laser que apresente uma frequência ressonante com o ^{235}U e que tenha uma linha suficientemente estreita, a radiação desse laser será absorvida preferencialmente por este isótopo. Desta maneira, vê-se que a determinação da largura de linha, do desvio isotópico e da estrutura hiperfina é de fundamental importância no desenvolvimento do processo de separação isotópica do urânio via laser. Estes parâmetros foram obtidos através da técnica de espectroscopia optogalvânica intermodulada usando uma lâmpada de catodo oco de urânio natural e um laser de corante em anel.

1 Introdução

Cada espécie atômica é caracterizada por um conjunto discreto e peculiar de estados energéticos. As frequências da radiação que cada átomo pode absorver ou emitir formam, também, um conjunto discreto e característico dos átomos de sua espécie.

A estrutura e o volume do núcleo de um átomo exercem, por outro lado, uma influência sobre seus níveis energéticos. Átomos de um mesmo elemento com diferentes estruturas nucleares (isótopos) apresentam diferenças sutis em seus espectros. No caso do urânio, o núcleo do isótopo ^{235}U possui 92 prótons e 143 nêutrons, enquanto que o do ^{238}U possui 3 nêutrons a mais. Este fato dá origem a pequenas diferenças entre os espectros dos dois isótopos. Duas importantes propriedades podem ser observadas: (i) na região de 6000 Å existe um deslocamento entre as frequências centrais de absorção dos dois isótopos em torno de 5 a 10 GHz [1]; (ii) enquanto que a linha do isótopo ^{238}U é simples, a correspondente ao ^{235}U apresenta várias componentes. Esta última propriedade é conhecida como *estrutura hiperfina* e resulta da diferença entre os spins nucleares dos dois isótopos ($I = 0$ para ^{238}U e $I = 7/2$ para ^{235}U).

Desvios na frequência de absorção de isótopos diferentes, permitem que um dado isótopo seja excitado seletivamente por um feixe de luz monocromática. No caso do urânio, se uma mistura dos isótopos ^{235}U e ^{238}U for irradiada por um laser que apresente uma frequência ressonante com o ^{235}U e que tenha uma linha suficientemente estreita, a luz deste laser será absorvida preferencialmente por este isótopo.

Assim, vê-se que a determinação da largura de linha, do desvio isotópico e da estrutura hiperfina é de fundamental importância no desenvolvimento do processo de separação isotópica do urânio via lasers. Estas quantidades foram obtidas através da técnica de espectroscopia optogalvânica de intermodulação (IMOGS) [2] que, para elementos refratários, como o urânio, associa a eficiência de evaporação por "sputtering" com um instrumento de detecção muito sensível [3, 4].

2 Arranjo Experimental

O arranjo experimental, mostrado na Figura 1, consiste basicamente de: um laser de Argônio - Coherent-Innova

200 operando com uma potência de 8 W; um laser de corante em anel - Coherent CR-699 21 operando em um único modo e com largura de linha em torno de 1 MHz, com uma potência de 500 mW (CW) quando sintonizado em 5915 Å; um monocromador duplo - Spex 1402; uma célula de iodo; um interferômetro Fabry Perot - Spectra Physics 470 - FSR 2 GHz; um chopper - Stanford Research System, Inc. - SR540; um lock-in - Stanford Research System, Inc. - SR530; uma lâmpada de catodo oco de urânio natural e um micro-computador IBM-PC/XT com uma placa GPIB para aquisição de dados.

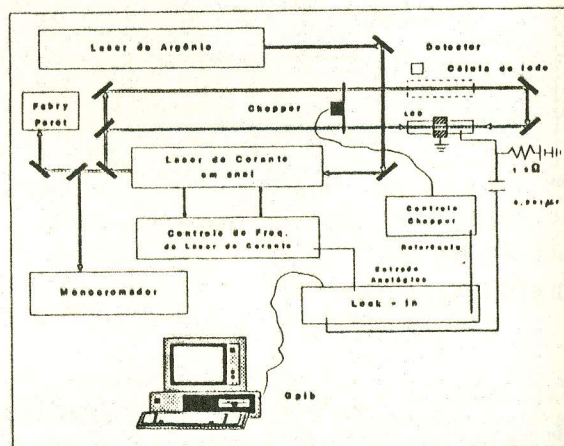


Figura 1: Arranjo experimental

3 Resultados

A transição do estado fundamental para o estado excitado 16900 cm^{-1} (5915 Å) do ^{235}U [5, 6] possui 21 componentes de estruturas hiperfinas. Dentre essas, distinguem-se 8 componentes principais designadas pelas letras maiúsculas A, B, ..., H que resultam da regra de seleção do momento angular total do átomo $F' - F = +1$ ($\vec{F} = \vec{I} + \vec{J}$); 7 componentes

cujas intensidades são menos intensas e designadas pelas letras a, b, ..., g ($F' - F = 0$) e 6 componentes muito fracas ($< 0,5\%$ da intensidade de A) resultante de $F' - F = -1$. Com exceção dessas últimas, estas componentes encontram-se representadas na Figura 2. A energia de um dado nível da estrutura hiperfina pode ser determinada a partir da relação de Casimir [6]:

$$W_{\alpha J F} = W_{\alpha J} + \frac{C}{2} A_{\alpha J} + B_{\alpha J} \frac{3C(C+1) - 4I(I+1)J(J+1)}{I(2I-1)J(2J-1)} \quad (3.1)$$

onde

$$C = F(F+J) - I(I+1) - J(J+1) \quad e,$$

$$F = (I+J), (I+J-1), \dots, |I-J|,$$

sendo que os números quânticos I e J representam o momento de spin nuclear e o momento angular eletrônico, respectivamente; $A_{\alpha J}$ é o fator de desdobramento magnético; $B_{\alpha J}$ a constante de acoplamento de quadrupolo nuclear.

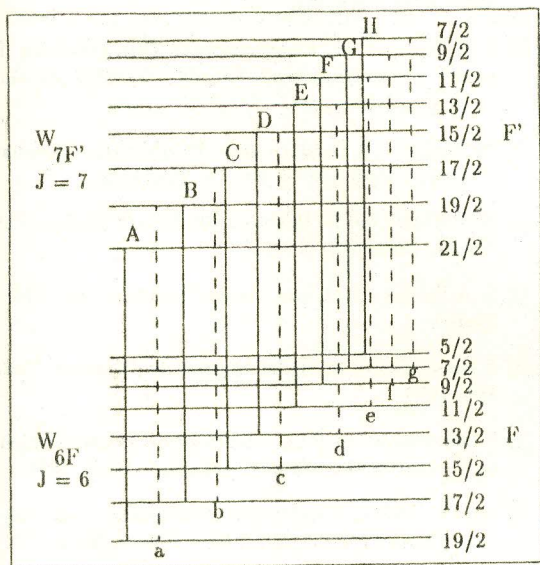


Figura 2: Diagrama simplificado da estrutura hiperfina do isótopo ^{235}U para a transição 5915 \AA

A partir da Eq. 3.1 pode-se ver que a estrutura hiperfina em estudo é definida por quatro incógnitas. Para o nível fundamental ($J = 6$) têm-se o fator de desdobramento magnético A_0 e a constante de acoplamento de quadrupolo nuclear B_0 , enquanto que para o nível superior da transição têm-se A_1 e B_1 . Estas constantes da estrutura hiperfinas podem ser determinadas a partir de medidas da separação entre dois níveis hiperfinos de duas transições diferentes de cada nível.

Usando a técnica de espectroscopia optogalvânica (ESOG) convencional [3] obtiveram-se as transições correspondentes aos isótopos ^{235}U e ^{238}U em relação as transições

Tabela 1: Separação entre as componentes principais A, B, ..., H da estrutura hiperfina do ^{235}U da transição $0 - 16900 \text{ cm}^{-1}$.

| Componentes | Separações entre as componentes, GHz | | | | | |
|-------------|--------------------------------------|-----------|-----------------|-----------|----------|-----------|
| | Este Trabalho | | Gerstenkorn [6] | | Böhm [8] | |
| | Medido | Calculado | Medido | Calculado | Medido | Calculado |
| A - B | 1,74 | 1,70 | 1,76 | 1,76 | 1,77 | 1,77 |
| B - C | 1,28 | 1,29 | 1,29 | 1,29 | 1,28 | 1,30 |
| C - D | 0,95 | 0,95 | 0,98 | 0,94 | 0,94 | 0,94 |
| D - E | 0,63 | 0,70 | 0,68 | 0,68 | 0,67 | 0,68 |
| E - F | 0,59 | 0,53 | - | 0,50 | 0,52 | 0,50 |
| F - G | 0,36 | 0,42 | - | 0,39 | 0,37 | 0,38 |
| G - H | 0,33 | 0,35 | - | 0,33 | 0,34 | 0,33 |
| A - H | 5,89 | 5,97 | - | 5,90 | 5,90 | 5,91 |

do Iodo [7] (ver Figuras 3 e 4). Assim, obteve-se que o nível da transição 5915 \AA do ^{238}U situa-se em $16900,386 \text{ cm}^{-1}$, enquanto que a primeira componente da estrutura hiperfina do ^{235}U situa-se em $16900,557 \text{ cm}^{-1}$. Usando a IMOGS pode-se resolver a estrutura hiperfina do ^{235}U (ver Figura 5). A partir das separações entre as componentes da estruturas hiperfinas obtiveram-se as constantes da estrutura hiperfina $A_0 = -2,04 \text{ mK}$, $B_0 = 133 \text{ mK}$, $A_1 = -5,73 \text{ mK}$ e $B_1 = 88 \text{ mK}$ ($1 \text{ mK} = 10^{-3} \text{ cm}^{-1}$), de modo análogo ao encontrado na referência [6]. Além disso, a partir da Eq. 3.1 obteve-se o valor de $16900,666 \text{ cm}^{-1}$ para o centro desta transição, o qual possui boa concordância com o valor de $16900,665 \text{ cm}^{-1}$ obtido através do cálculo do centro de gravidade da Figura 5. Assim, obteve-se que o desvio isotópico entre os isótopos ^{235}U e ^{238}U é de $8,4 \pm 0,1 \text{ GHz}$. Na Figura 6 encontra-se o perfil teórico da estrutura hiperfina construído a partir da Eq. 3.1, dos valores das intensidades teóricas das componentes da estruturas encontrada na literatura [6] e assumindo um perfil Lorentziano de largura (FWHM) igual ao da componente A obtido a partir da Figura 5. Na Tabela 1 encontram-se as separações entre as componentes principais da estrutura hiperfina do ^{235}U obtidas, comparada a valores da literatura [6, 8].

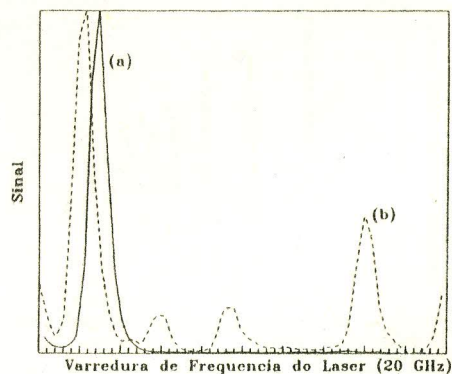


Figura 3: Transição $0 - 16900,3866 \text{ cm}^{-1}$ do ^{238}U , obtida através da ESOG convencional, em relação à transição do Iodo ($16900,8228 \text{ cm}^{-1}$). Separação ^{238}U -Iodo = $13,1 \text{ GHz}$. (a) ^{238}U ; (b) Iodo.

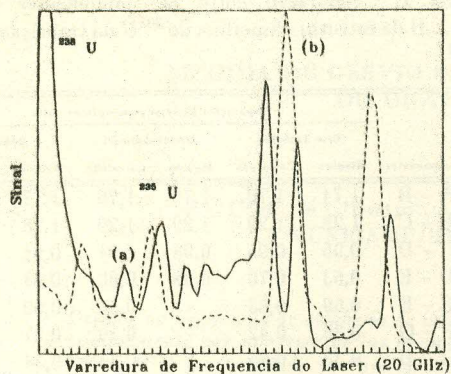


Figura 4: Estrutura hiperfina do ^{235}U , obtida através da ESOG convencional, em relação à transição do Iodo ($16900,8228\text{ cm}^{-1}$). Separação primeira componente ^{235}U -Iodo=8 GHz. (a) ^{235}U ; (b) Iodo.

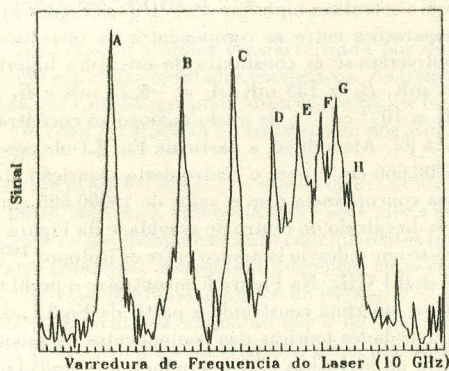


Figura 5: Estrutura hiperfina do ^{235}U , obtida através da IMOGS

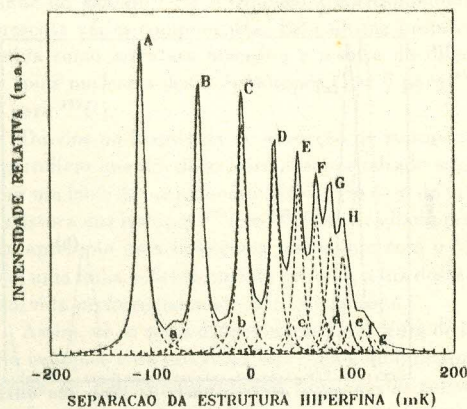


Figura 6: Perfil teórico da estrutura hiperfina da transição 5915 \AA do ^{235}U . A curva sólida é a estrutura hiperfina resultante das contribuições de cada componente hiperfina, representadas pelas curvas tracejadas.

4 Conclusão

Os resultados obtidos são de grande importância no desenvolvimento do processo de separação isotópica do urânio via laser e, além disso, comprovam a grande sensibilidade da técnica usada na determinação do desvio isotópico e estrutura hiperfina, visto que usamos uma lâmpada de cátodo oco de urânio natural. Usando-se lâmpadas de cátodo oco de urânio levemente enriquecido é possível determinar o desvio isotópico e a estrutura hiperfina para transições do urânio cujas seções de choque sejam menores que a da transição estudada neste trabalho.

Agradecimentos

Os autores agradecem o suporte financeiro dado pelo RHAEC/CNPQ e FAPESP.

Referências

- [1] Soubbaramayer, Workshop on Separation Phenomena in Liquids and Gases, Volume 1, Darmstadt, 20-23 July 1987, West Germany.
- [2] F.C.Cruz, et al, "Espectroscopia Optogalvânica Intermodulada em Vapores de Urânio", trabalho apresentado neste simpósio.
- [3] M.Brogliola, F.Catoni and P.Zampetti, Journal de Physique, Colloque C7 No. 11, 251 (1983).
- [4] B. Barbieri and N. Beverini, Reviews of Modern Physics, Vol 62, No.3, 603, (1990).
- [5] G.A.Palmer, et al, Los Alamos Scientific Lab. NM-USA, 1980.
- [6] S.Gerstenkorn, et al, Le Journal de Physique, Tome 34, 805, 1973.
- [7] S.Gerstenkorn et P.Luc, Editions du Centre National de la Recherche Scientifique - France - Paris, 1978.
- [8] H.D.V. Böhm, Dissertation Universität Hamburg, Report GKSS 77/E/39, 1977; Opt. Comm. 26-2, 177, 1978.

Abstract

Absorption frequency shifts of different isotopes allow a given isotope to be selectively excited by a monochromatic radiation beam. In the case of uranium, if a ^{235}U and ^{238}U isotopes mixture is pumped by a laser tuned in resonance with the ^{235}U transition and with a sufficiently narrow linewidth, the laser radiation will be absorbed preferentially by this isotope. Hence, the linewidth, isotope shift and hyperfine structure determination is very important in the development of the atomic vapor laser isotope separation process. This measurements were made by means of intermodulated optogalvanic spectroscopy, using a natural uranium hollow cathode discharge and a ring dye laser.