

MEDIDA DO TEMPO DE VIDA DO URÂNIO VIA ESPECTROSCOPIA OPTOGALVÂNICA DE DOIS FÓTONS

José W. Neri, Marcelo G. Destro, Nicolau A. S. Rodrigues,
Carlos Schwab, Armando Mirage¹ e Lin Fucheng²

Instituto de Estudos Avançados - CTA, São José dos Campos, SP

A espectroscopia optogalvânica pode ser usada para fornecer informações diretas muito úteis na identificação de níveis de altas energias, medidas de deslocamento isotópico, estruturas finas e hiperfinas, etc., porém devem-se tomar cuidados especiais na utilização de seus resultados para se determinar a forma e a largura de linha das transições envolvidas. Neste trabalho utilizamos e descrevemos a técnica de espectroscopia optogalvânica de dois fótons para medir o tempo de vida do primeiro nível excitado do urânio. Para tal, são realizadas medidas do atraso entre os pulsos dos lasers utilizados em função da corrente de operação da lâmpada de catodo oco de urânio. Além disso, apresentamos e discutimos os resultados preliminares obtidos para o nível excitado 7M_7 do urânio, usando esta técnica.

INTRODUÇÃO

A espectroscopia optogalvânica tem sido considerada como uma técnica muito atrativa, quando comparada com as outras técnicas convencionais de espectroscopia na região desde o ultravioleta até o infravermelho próximo. Em primeiro lugar, ela é uma técnica mais simples e econômica do que as outras. A observação direta da variação dos parâmetros da descarga simplificam em muito os dispositivos de detecção. Por outro lado, ela é também muito útil na análise de materiais refratários, pois estados gasosos destes elementos são obtidos eficientemente por pulverização catódica [1-2]. Contudo, existem algumas objeções com relação ao seu uso, sendo a principal delas ligada ao problema de realizar espectroscopia de alta resolução em um meio que contenha uma descarga elétrica [3]. A espectroscopia optogalvânica pode ser usada para fornecer informações diretas muito úteis na identificação de níveis de altas energias, medidas de deslocamento isotópico, estruturas finas e hiperfinas, etc., porém devem-se tomar cuidados especiais na utilização de seus resultados para se determinar a forma e a largura de linha das transições envolvidas.

Neste trabalho utilizamos e descrevemos uma técnica alternativa de espectroscopia optogalvânica de dois fótons para medir o tempo de vida do primeiro nível excitado do urânio. Para tal, são realizadas medidas do atraso entre os pulsos dos lasers utilizados em função da corrente de operação da lâmpada de catodo oco de urânio. Além disso, apresentamos e discutimos os resultados preliminares obtidos para o nível excitado 7M_7 do urânio, usando esta técnica.

TEORIA

Considere o diagrama de níveis de energia mostrado na Figura 1. Deseja-se medir o tempo de vida espontâneo do primeiro estado excitado. Neste trabalho mede-se o sinal optogalvânico em função do atraso entre os pulsos dos lasers, usados para produzir uma excitação seqüencial de dois fótons como será visto a seguir. Considerou-se apenas os pontos relevantes que influenciam o tempo de vida efetivo, τ_{ef} , do primeiro nível excitado. Assim a equação de taxa do primeiro nível excitado é formada pela contribuição dos processos de excitação estimulada, do próprio decaimento espontâneo, do termo de decaimento colisional entre os átomos de urânio excitados do gás tampão de argônio e do termo que leva em

consideração o decaimento colisional devido aos elétrons da descarga. Desta maneira, a equação de taxa pode ser expressa por [4-5]:

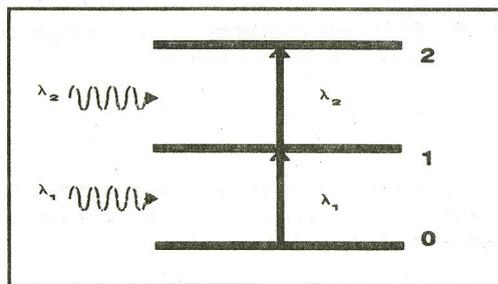


Figura 1: Diagrama de níveis excitados seqüencialmente.

$$\frac{dn_1}{dt} = -W\Delta N - \frac{n_1}{\tau_{esp}} - \langle\sigma v\rangle_{Ar} n_{Ar} n_1 - \langle\sigma v\rangle_e n_e n_1 \quad (1)$$

onde, $\Delta N = n_0 - n_1$. Observe que o termo de decaimento colisional urânio-urânio não foi levado em consideração pois a densidade de urânio é muito pequena quando comparada com a densidade de argônio ($n_{Ar} \approx 10^{11}$ e $n_{Ar} \approx 10^{17}$). Desta maneira, podemos escrever a Eq. (1) em função do termo estimulado e do tempo de decaimento efetivo, i.e.:

$$\frac{dn_1}{dt} = -W\Delta N - \frac{n_1}{\tau_{ef}} \quad (2)$$

onde, o tempo efetivo, τ_{ef} , é expresso por:

$$\frac{1}{\tau_{ef}} = \frac{1}{\tau_{esp}} + \langle\sigma v\rangle_{Ar} n_{Ar} + \langle\sigma v\rangle_e n_e \quad (3)$$

sendo que o segundo termo da Eq. (3) nada mais é do que a taxa de decaimento colisional devido a pressão do gás tampão dada por [5]:

$$\frac{1}{\tau_{cAr}} = \langle\sigma v\rangle_{Ar} n_{Ar} = \frac{16\pi^{1/2} a^2}{(MkT)^{1/2}} P \quad (4)$$

1. IPEN/CNEN-SP

2. Shanghai Institute of Optics & Fine Mechanics - Academia Sinica - China.

onde p é a pressão do argônio, $a = 0,88 \text{ \AA}$ é o raio do átomo de argônio, M é a massa do átomo de argônio ($3 \times 10^{-26} \text{ kg}$) e k é a constante de Boltzmann.

O terceiro termo da Eq.(3) representa a colisão superelástica com os elétrons da descarga. Supondo que $\langle \sigma v \rangle_c \approx c v_e$ e que a densidade de elétrons dada por [5]:

$$n_e = \frac{J}{e v_{deriva}} \quad (5)$$

na região de descarga "glow" normal, onde ocorre o efeito optogalvânico, o campo elétrico e a velocidade de deriva (v_{deriva}) são praticamente independentes da corrente. Resulta, assim, que a densidade de elétrons, n_e , é proporcional a densidade de corrente da descarga. Portanto, pode-se escrever o terceiro termo da Eq.(3) como segue:

$$\frac{1}{\tau_{c_{sp}}} = \langle \sigma v \rangle_c \frac{J}{e v_{deriva}} = \frac{\langle \sigma v \rangle_c}{A e v_{deriva}} I \quad (6)$$

Reescrevendo a Eq.(3):

$$\frac{1}{\tau_{ef}} = \frac{1}{\tau_{esp}} + \frac{1}{\tau_{c_{sp}}} + \frac{1}{\tau_{c_{dr}}} \quad (7)$$

Desta maneira, pode-se escrever que o recíproco do tempo de decaimento efetivo varia linearmente com a corrente de descarga de operação da lâmpada de catodo oco, isto é:

$$\frac{1}{\tau_{ef}} = A + B I \quad (8)$$

onde os parâmetros A e B são ajustados a partir de medidas do tempo efetivo de decaimento em função da corrente de descarga da lâmpada de catodo oco, sendo:

$$A = \frac{1}{\tau_{esp}} + \frac{1}{\tau_{c_{dr}}} \quad (9)$$

RESULTADOS E DISCUSSÕES

O arranjo experimental usado está mostrado na Figura 2. Este consiste basicamente de: dois lasers de vapor de cobre sincronizados, operando com uma taxa de repetição de pulsos de 5 kHz e largura de pulsos de 40 ns; dois lasers de corante, cada um dos quais libera uma potência média em torno de 100 mW com duração de pulso de 25 ns, com uma largura de linha em torno de 0,7 GHz (0,01 Å) e cuja varredura de frequência é realizada por meio da variação de pressão no recipiente que contém os elementos de sintonia do oscilador; uma lâmpada de catodo oco de urânio natural preenchida com 2,6 Torr de argônio como gás tampão; um osciloscópio, um "boxcar averager" e um registrador. Tanto as leituras do "boxcar" quanto as do osciloscópio são efetuadas após a chegada de um pulso de referência, o qual é suprido pelo gerador de atraso e de referência (G) mostrado nesta figura. Um monocromador também foi utilizado para sintonizar e calibrar o sinal optogalvânico com o sinal de emissão espontâneo emitido pela lâmpada. Os feixes dos lasers de corante, com diferentes comprimentos de ondas, foram combinados espacialmente por meio de um divisor de feixe (refletividade de 50%).

Realizaram-se medidas do tempo de decaimento efetivo do primeiro nível excitado (transição 7M_7 do urânio) para quatro correntes de operação da lâmpada de catodo oco. Para tal, primeiro selecionou-se a corrente de operação da lâmpada e a seguir sintonizou-se o laser LC-1 sobre a transição $^3L_6 - ^7M_7$ (5915,39 Å),

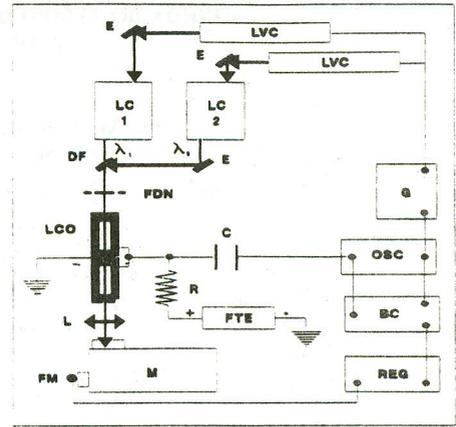


Figura 2: Arranjo experimental utilizado.

de modo a popular o primeiro nível excitado a $16900,39 \text{ cm}^{-1}$, e por meio da varredura do comprimento de onda do laser LC-2, para um determinado tempo de atraso entre os pulsos dos lasers, em torno de 6050 \AA , obtém-se, assim, uma transição a partir deste primeiro nível excitado. Mantendo-se a corrente de operação da lâmpada fixa e alterando-se os atrasos entre os pulsos dos lasers foi possível medir o tempo efetivo de decaimento do primeiro nível excitado. A Figura 3 mostra as medidas do sinal optogalvânico em função do atraso entre os pulsos dos lasers, LC-1 e LC-2, para as diferentes correntes utilizadas. A partir destas medidas determina-se os tempos de decaimento efetivos para cada uma das correntes utilizadas. A Figura 4 mostra o recíproco do tempo de decaimento efetivo em função da corrente de operação da lâmpada de catodo oco. Através do ajuste pelo método dos mínimos quadrados, segundo a Eq.8, obteve-se $A = 3,48 \times 10^{-7} \text{ s}^{-1}$ e $B = 1,02 \times 10^6 \text{ (mA} \cdot \text{s)}^{-1}$.

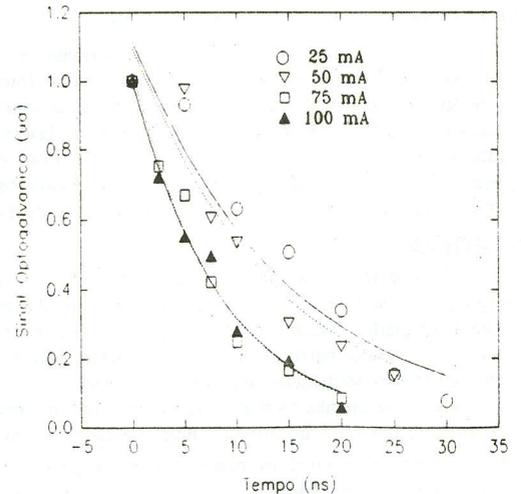


Figura 3: Sinal optogalvânico em função do tempo de atraso entre os pulsos dos lasers.

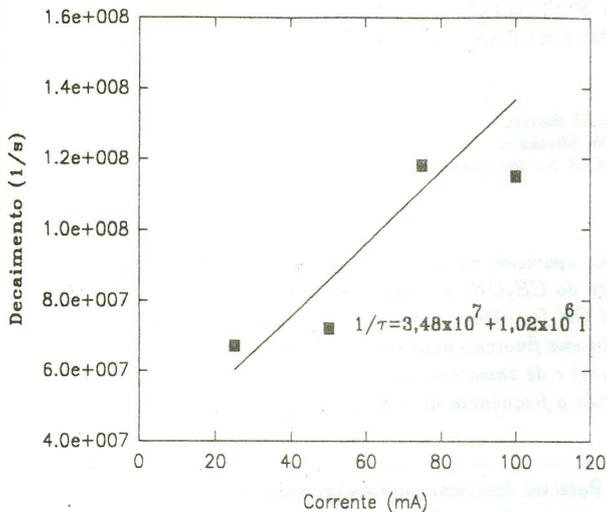


Figura 4: Tempo de decaimento efetivo em função da corrente de operação da lâmpada de catodo oco.

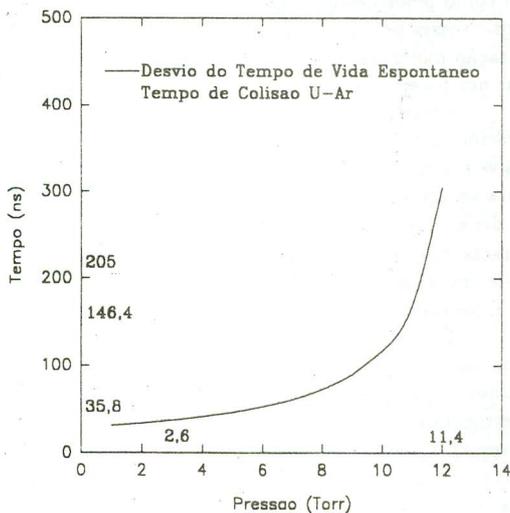


Figura 5: Desvio do tempo de vida espontâneo e tempo de decaimento colisional em função da pressão do gás tampão.

Como supõe-se que a pressão do gás tampão de argônio seja de 2,6 Torr e desde que para medir o tempo de decaimento espontâneo deve-se eliminar os efeitos de colisão com os elétrons da descarga, através da redução da corrente, é razoável supor que neste limite ($I \rightarrow 0$) a temperatura do gás tampão seja a do ambiente (300 K). Desta maneira, usando as Eqs. (4) e (9) obtêm-se os valores de 146,4 ns para o tempo de decaimento colisional e o valor de 35,7 ns para o tempo de vida espontâneo da transição. Este valor de 35,7 ns possui uma discrepância muito grande com o valor encontrado na literatura [6-7] para o nível excitado 7M_7 do urânio ($\tau_{esp} = 205$ ns). Por outro lado, esta discrepância pode ser justificada se observarmos os valores obtidos para o tempo de decaimento espontâneo se a pressão do gás tampão não for precisamente conhecida, ver Figura 5. Nestas medidas preliminares foram medidos poucos pontos e estas ainda apresentam um erro experimental da ordem de 15%. A lâmpada utilizada foi construída em 1992 e o

padrão de descarga dela indica que a mesma está no final de sua vida útil de operação. Assim é de se esperar que a pressão não seja mais 2,6 Torr e o valor indicado na Figura 5 de 11,4 Torr não nos parece muito fora da realidade. Além disso, a Figura 5 mostra que a dependência com a pressão do gás tampão é mais relevante do que a dependência com a corrente de operação da lâmpada.

CONCLUSÃO

Apesar dos resultados obtidos neste experimento não serem conclusivos, para a medida do tempo de decaimento espontâneo da transição a partir da medida do atraso entre os pulsos de excitação de dois fótons, elas indicam que em princípio é possível utilizar esta técnica de medida. A próxima etapa deste trabalho é a construção de novas lâmpadas de catodo oco, para as quais se possa controlar a pressão do gás tampão, e repetir as medidas realizadas neste trabalho, além de realizar medidas do sinal optogalvânico para diferentes pressões do gás tampão e para outras transições do urânio.

REFERÊNCIAS

- [1] Barbieri, N. Beverini, and A. Sasso, "Optogalvanic Spectroscopy". Reviews of Modern Physics, 12-3, 603, 1990
- [2] Marcelo G. Destro, "Espectroscopia a Laser em Vapor Metálico de Urânio". Tese de Doutorado, ITA - 1993.
- [3] Bachor, P. J. Manson, and R. J. Sandeman, "Optogalvanic Detection as a Quantitative Method in Spectroscopy", Opt. Commun. 43-5, 337, 1982
- [4] Wolfgang Demtröder, "Laser Spectroscopy - Basic Concepts and Instrumentation", Chap.2, 6, Springer-Verlag Berlin Heidelberg New York, 1982.
- [5] Orazio Svelto, "Principles of Lasers", Chaps. 2-3, Plenum Press, New York and London, Third Edition, 1989
- [6] Hao-Lin Chen and C. Borzilleri, "Laser Induced Fluorescence Studies of U_{11} Produced by Photoionization of Uranium", J. Chem. Phys. 74-11, 6063, 1981.
- [7] E. Miron, R. David, G. Erez, S. Lavi, and L.A. Levin, "Laser Spectroscopy of U_1 Using Stepwise Excitation and Fluorescence Detection", J. Opt. Soc. Am., 69-2, 256, 1979.

ABSTRACT

The optogalvanic spectroscopy can give direct useful information for state assignments of high-lying levels and for measurements of isotope shifts, fine and hyperfine structures and so on, while great care must be taken in the utilization of the data for line shape and linewidth. In this paper we described the two photons optogalvanic spectroscopy used to measure the uranium first excited level lifetime. Hence, we have made lasers pulses delay measurements in function of uranium hollow cathode lamp operation current. Furthermore, we shown and we discussed the preliminary results for the 7M_7 uranium excited level using this technical.