

Medida de tempo de vida via absorção de 2 fótons em lâmpadas de catodo oco: Análise Numérica.

N.A.S. Rodrigues, M.G. Destro, J.W. Neri
CTA - Instituto de Estudos Avançados
São José dos Campos - SP

A. Mirage
CNEN - Instituto de Pesquisas Energéticas e Nucleares
São Paulo - SP

Resumo

A técnica de medida de tempos de vida via espectroscopia optogalvânica é estudada, utilizando-se de um modelo numérico, baseado em equações de taxa, visando avaliar a influência da duração dos pulsos de laser nos resultados obtidos. É observado que mesmo quando a duração dos pulsos de laser é comparável com o tempo de vida da transição a ser estudada, pode-se inferir os resultados com razoável precisão.

Introdução

Em outro trabalho apresentado neste mesmo Encontro, apresentamos uma série de medidas de tempos de vida da transição de 5915 \AA do urânio utilizando a técnica de espectroscopia optogalvânica de 2 fótons /1/. Estas medidas foram realizadas em uma lâmpada de catodo oco construída nas dependências do IPEN, variando-se a corrente de descarga para permitir uma avaliação da influência da colisão dos átomos com os elétrons na descarga no tempo de vida efetivamente observado. O tempo de vida espontâneo encontrado na literatura para a transição citada acima é da ordem de 250 ns; entretanto, na lâmpada de catodo oco, devemos considerar os efeitos colisionais (quer com átomos e íons, quer com elétrons), e assim medimos tempos de vida da ordem de 35 ns. Este tempo é da ordem da duração dos pulsos de lasers de corante utilizados em nossas experiências (25 ns para o primeiro fóton e 43 ns para o segundo fóton). Infelizmente, o tempo de vida medido não é decorrente de uma simples convolução entre a forma temporal dos pulsos de laser e o decaimento do nível superior da transição de interesse, devido, provavelmente, a efeitos de saturação da absorção.

Neste trabalho apresentamos um modelo teórico, baseado em equações de taxa, que permite, no atual estágio, uma avaliação qualitativa do comportamento do sinal optogalvânico em função dos parâmetros dos lasers de corante. Com este modelo podemos delimitar, em uma primeira aproximação, as condições ideais de trabalho para a determinação de tempos de vida, em lâmpadas de catodo oco, utilizando-se da absorção de 2 fótons.

O modelo teórico.

O modelo teórico é baseado na aproximação de que a variação do sinal optogalvânico devido à absorção do segundo fóton é proporcional à variação de população do nível superior da transição devido a este segundo fóton /2/. Assim, para a

descrição do sinal optogalvânico devido a absorção do segundo fóton, a menos de uma constante de proporção, basta descrever o comportamento da população do nível 2 no tempo. Para tanto, foram montadas as seguintes equações de taxa, para um sistema de 3 níveis, indicados pelos índices de 0 a 2, interagindo com dois feixes de laser (I_1 para a transição $0 \rightarrow 1$, I_2 para a transição $1 \rightarrow 2$), supondo que o meio é opticamente fino:

$$\begin{aligned} \frac{dN_1}{dt} &= w_{0,1}N_0 - w_{1,2}N_1 - \frac{I_1}{I_{s1}} \frac{(N_1 - N_0)}{\tau_{1,0}} + \frac{I_2}{I_{s2}} \frac{(N_2 - N_1)}{\tau_{2,1}} - \frac{N_1}{\tau_{1,0}} + \frac{N_2}{\tau_{2,1}} \\ \frac{dN_2}{dt} &= w_{0,2}N_0 + w_{1,2}N_1 - \frac{I_2}{I_{s2}} \frac{(N_2 - N_1)}{\tau_{2,1}} - \frac{N_2}{\tau_{2,1}} - \frac{N_2}{\tau_{2,0}} \\ N_{total} &= N_0 + N_1 + N_2 = \text{constante} \end{aligned} \quad (1)$$

onde N_i é a população do nível i , w_{ij} é a taxa de excitação por colisão com elétrons do nível i para j , I_i é a intensidade do laser i , I_{si} é a intensidade de saturação do nível i e τ_{ij} é o tempo de relaxação efetivo (incluindo efeitos colisionais e de relaxação super-elástica).

Resultados e análise.

As Eq. 1 foram resolvidas, utilizando-se o método de Runge-Kutta de 4ª ordem, normalizando-se os tempos com relação a $\tau_{1,0}$ e as populações com relação a N_{total} . Foram assumidos: $\tau_{1,0} = 250$ ns, $\tau_{2,1} = 30$ ns /3/, $\tau_{2,1} \ll \tau_{2,0}$, as taxas de excitação por colisão com elétrons foram arbitrariamente ajustadas de modo que, sem a presença de lasers, as populações após atingido o equilíbrio fossem $N_i \approx 10^{-4} N_{total}$ e $N_2 \approx 10^{-6} N_{total}$ e os pulsos de laser foram considerados, por simplicidade, como

$$S_i = \frac{I_i}{I_{si}} = S_{0i} \exp(-t / \tau_{Li}) \quad (2)$$

onde τ_{Li} é a duração do pulso de laser i .

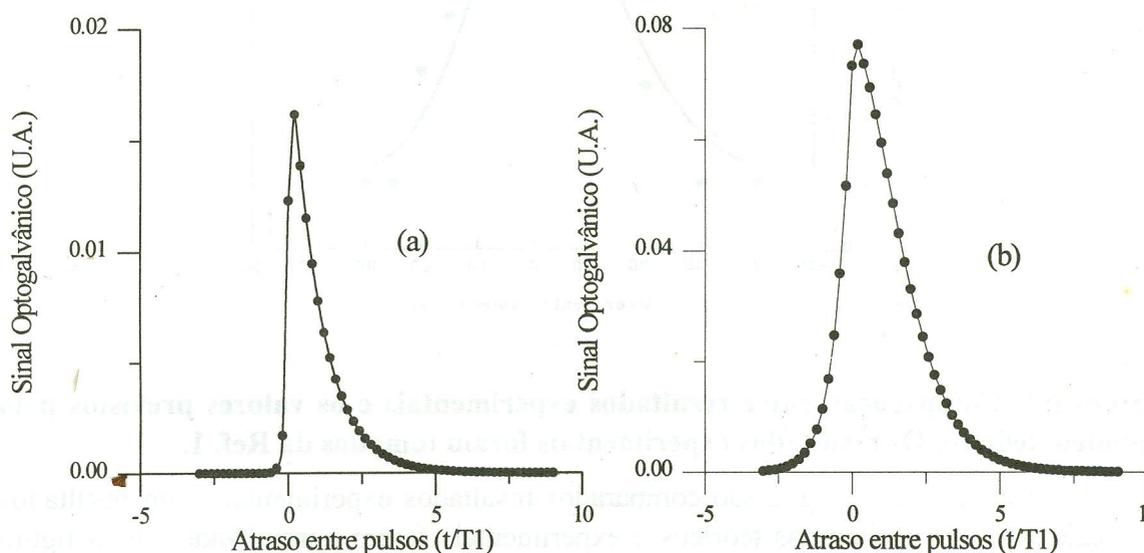


Figura 1: Amplitude máxima do sinal optogalvânico em função do atraso entre os pulsos de laser ($\Delta t > 0$ quando o pulso do laser 2 ocorre depois do pulso do laser 1). a-) $\tau_2 = 0,1 \tau_1$, $\tau_L = 0,1 \tau_1$, $S_1 = 10$, $S_2 = 5$; b-) $\tau_2 = 0,1 \tau_1$, $\tau_L = 0,5 \tau_1$, $S_1 = 10$, $S_2 = 5$.

Na Fig. 1, onde é traçado o valor de pico do sinal optogalvânico em função do atraso entre os pulsos de laser, são mostrados dois resultados destes cálculos quando aplicados para a-) a duração do pulso de laser muito menor que o tempo de vida $\tau_{1,0}$ e b-) a duração do pulso de laser da ordem do tempo de vida $\tau_{1,0}$. Em ambos os casos a duração do pulso do laser 1 é igual à duração do pulso do laser 2. Para o caso a-), como esperado, observa-se que a amplitude do sinal optogalvânico acompanha basicamente o processo de decaimento do nível 1. Ajustando-se uma exponencial decrescente à parte decrescente da curva obtém-se a constante de tempo igual a $\tau_{1,0}$. Para o caso b-), o comportamento do sinal optogalvânico em função do atraso entre pulsos tem três contribuições distintas (a taxa de excitação devido a absorção do laser 1, a taxa de relaxação e a taxa de excitação pelo laser 2), sendo que não obtivemos sucesso, provavelmente devido a não linearidade devido a efeitos de saturação, ao tentar recuperar os tempos envolvidos realizando deconvoluções. Entretanto, estas figuras permitem estabelecer um critério qualitativo para análise dos resultados de experiências de medidas de tempo de vida descrito na Ref. /1/: se a subida do sinal é suave, o tempo de vida de relaxação é da ordem de grandeza da duração do pulso do laser 2; o ajuste do final da cauda do sinal a uma exponencial decrescente fornece uma boa estimativa do tempo de relaxação.

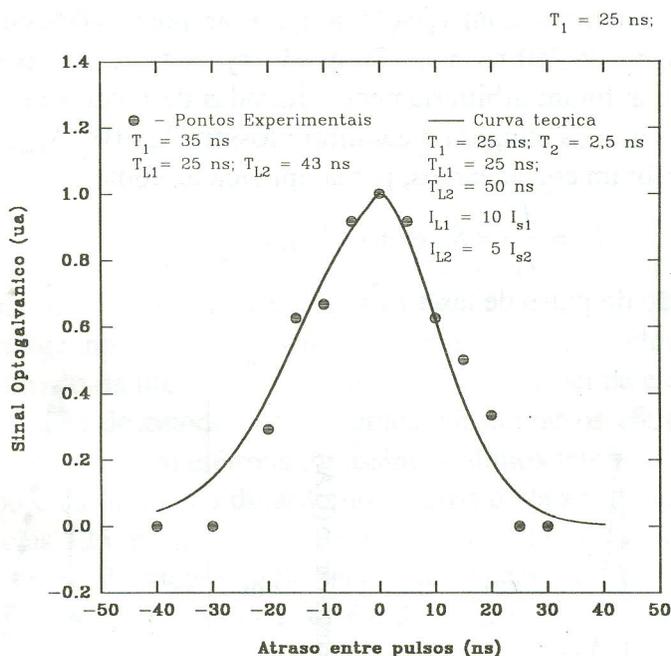


Figura 2: Comparação entre resultados experimentais e os valores previstos pelo modelo teórico. Os resultados experimentais foram tomados da Ref. 1.

Finalmente, na Fig. 2 são comparados resultados experimentais com resultados de cálculos, onde os pontos teóricos e experimentais foram normalizados. Esta figura mostra que ao se ajustarem os parâmetros das equações de taxa para que os valores calculados e teóricos apresentem uma boa concordância pode-se obter o valor do tempo de relaxação desejado. Entretanto, este é um processo extremamente moroso e, no momento, estamos trabalhando no sentido de, a partir da curva do sinal optogalvânico contra o atraso entre pulsos de lasers, conhecidos os tempos de vida dos lasers

utilizados, recuperar o tempo de vida desejado sem a necessidade de se resolverem as equações de taxa de modo iterativo.

Referências

- /1/ - J.W. Neri, M.G. Destro, N.A.S. Rodrigues, C. Schwab, A. Mirage, L. Fucheng, *Medida do tempo de vida do nível 7M_7 do urânio via espectroscopia optogalvânica de 2 fótons*, sendo apresentado no XVIII Encontro Nacional de Física da Matéria Condensada (1995).
- /2/ - B. Barbieri, N. Beverini, A. Sasso, *Optogalvanic Spectroscopy*, Rev. Mod. Phys., **12**, 3, 603 (1990)
- /3/ - L.R. Carlson, J.A. Paisner, E.F. Worden, S.A. Johnson, C.A. May, R.W. Solarz, *Radiative lifetimes, absorption cross sections and the observation of new high-lying odd levels of ^{238}U using multistep laser photoionization*, J. Opt. Soc. Am., **66**, 8, 846, 1976.