

Análise de formas de linhas em espectroscopia optogalvânica de intermodulação no Urânio

F. C. Cruz¹, M. G. Destro², A. Mirage³, D. Pereira¹,
A. Scalabrin¹, C. Schwab²

¹Instituto de Física - UNICAMP, ²IEAv - CTA,

³IPEN/CNEN - SP

Realizamos uma análise das formas de linhas obtidas pela técnica de espectroscopia optogalvânica de intermodulação, para o urânio. Tipicamente, elas apresentam um perfil lorentziano estreito sobreposto a um pedestal gaussiano largo, devido a colisões que mudam a velocidade. Um ajuste por mínimos quadrados permite a avaliação da influência destas colisões e a determinação das larguras homogênea e inhomogênea das transições, em função da pressão e corrente na descarga.

INTRODUÇÃO

O efeito optogalvânico (EOG) é uma mudança das propriedades elétricas de uma descarga, quando esta é iluminada por radiação ressonante com alguma transição atômica ou molecular de espécies presentes nesta descarga. Esta mudança é observada como um aumento ou decréscimo de condutividade e o efeito foi observado pela primeira vez em 1928 numa descarga de neônio (1). Sua utilização prática e extensiva teve, entretanto, de esperar pelo advento dos lasers de corrente sintonizáveis.

O efeito optogalvânico vem sendo então amplamente utilizado como uma técnica espectroscópica, considerada alternativa à espectroscopia de absorção e de fluorescência. Técnicas espectroscópicas de resolução sub-Doppler foram também extendidas ao EOG.

Neste trabalho utilizamos a técnica de intermodulação de frequências, demonstrada pela primeira vez em 1972, pela detecção da fluorescência no I_2 (2). Ela consiste em modular os feixes laser contrapropagantes de bombeamento e prova em frequências diferentes F_1 e F_2 . O sinal detectado contém termos lineares em F_1 e F_2 , com um perfil Doppler, que representam a fluorescência induzida pelo laser, e termos quadráticos com frequências de modulação $F_1 \pm F_2$. Estes termos representam o efeito de saturação e a detecção síncrona do sinal em qualquer uma destas frequências permite obter espectros com resolução sub-Doppler, livres do pedestal Doppler ("Doppler background") inerente ao esquema mais usual de espectroscopia de saturação, onde o feixe de bombeamento é modulado e a atenuação do feixe de prova é monitorada (3). Comparando ambas as situações, os espectros obtidos pela técnica de intermodulação geralmente apresentam uma melhor resolução do sinal saturado, pois a presença de um pedestal Doppler usualmente reduz a informação sobre o sinal sub-Doppler. Contudo a presença de colisões que mudam a velocidade ("velocity-changing collisions") pode ainda contribuir para a presença de um pedestal Doppler nos espectros obtidos pela técnica de intermodulação. Esta dificuldade pode ainda ser superada pelo uso da técnica de espectroscopia de excitação de polarização

intermodulada ("polarization intermodulation excitation spectroscopy"-POLINEX) (4).

O EOG foi, portanto, combinado com a técnica sub-Doppler de intermodulação de frequências, para estudar transições do urânio (5). Utilizamos lâmpadas de catodo oco de urânio natural, contendo Ar e Ne como gases "buffer". As transições $^5L_6 - ^7L_7$ (5L_6 é o estado fundamental) e $^5L_6 - ^5K_6$ foram detectadas para o isótopo ^{238}U . A partir de um estudo das formas de linha obtidas, determinamos a temperatura eletrônica da descarga e as larguras inhomogêneas e homogêneas das transições estudadas, supondo um regime de "colisões fortes".

ESQUEMA EXPERIMENTAL

A montagem experimental é a usual de espectroscopia optogalvânica de intermodulação e está ilustrada na Fig.1.

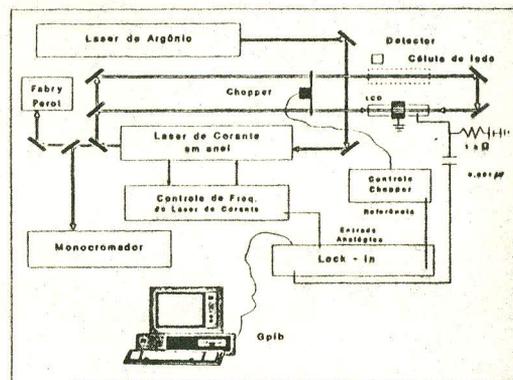


Fig.1- Arranjo experimental para espectroscopia optogalvânica de intermodulação.

Os detalhes de construção das lâmpadas foram descritos previamente e podem ser encontrados na ref.(6). Utilizamos uma lâmpada de catodo oco de urânio natural (99.3% de ^{238}U e 0.7% de ^{235}U), contendo Ar a uma pressão de 2 Torr, e outra contendo Ne a uma pressão de 8 Torr. As lâmpadas foram operadas com valores de corrente de até 200 mA e refrigeradas com água ($T \approx 15^\circ\text{C}$).

Como fonte de radiação foi utilizado um laser de corante monomodo operando em regime contínuo (largura de linha da ordem de 1 MHz). Os detalhes do seu funcionamento, procedimento de operação e sintonia em frequência, além do sistema de aquisição de dados, foram descritos previamente (7).

O feixe laser é dividido em dois feixes de intensidades iguais por um divisor de feixes. Um feixe é então modulado em amplitude por um chopper, a uma frequência F_1 , e o outro, a uma frequência diferente F_2 . A detecção é feita por um analisador síncrono de sinal ("lock-in"). O sinal optogalvânico foi sincronamente detectado na frequência $F_1 + F_2$. Uma cela de iodo foi utilizada para a calibração em comprimento de onda do experimento (7). Espectros com resolução Doppler podiam ser simplesmente obtidos bloqueando um dos feixes, e detectando sincronamente o sinal optogalvânico na frequência de modulação do outro.

RESULTADOS E DISCUSSÃO

A fig.2 apresenta registros, com resolução Doppler, das transições em 5915.4 Å e 6056.8 Å do ^{238}U , obtidos com detecção optogalvânica e apenas um feixe laser. As Figs.2a (transição em 5915.4 Å) e 2c (transição em 6056.8 Å) foram obtidas com a lâmpada contendo Ar, a uma pressão de 2 Torr e correntes de 90 mA e 75 mA respectivamente; a Fig.2b (transição em 5915.4 Å) foi obtida com a lâmpada contendo Ne, a uma pressão de 8 Torr e corrente de 80 mA. As linhas são alargadas por efeito Doppler. As larguras (FWHM), determinadas pelo ajuste computacional a uma função gaussiana (círculos na Fig.2), são de 780 ± 5 MHz (Fig.2a), 865 ± 5 MHz (Fig.2b) e 725 ± 5 MHz (Fig.2c). A partir destes valores, estimamos a temperatura cinética do plasma, para cada caso (8). Os valores encontrados foram $T=1155 \pm 15$ K, $T=1425 \pm 15$ K e $T=994 \pm 15$ K respectivamente. Estas diferenças devem-se aos diferentes valores de correntes que foram empregados em cada medida e às diferentes pressões nas lâmpadas.

A seguir passamos a discutir os resultados obtidos com a técnica de intermodulação de frequências para a transição em 5915.4 Å, do ^{238}U , usando as lâmpadas contendo Ar e Ne, e a transição em 6056.8 Å do ^{238}U , usando a lâmpada contendo Ar. Os espectros optogalvânicos obtidos por esta técnica usualmente apresentam um perfil homogêneo estreito sobreposto a um pedestal gaussiano largo, com largura correspondente à largura Doppler. Este pedestal é devido a colisões que mudam a velocidade ("velocity-changing collisions") (4). Um sinal saturado pode ser gerado se um átomo

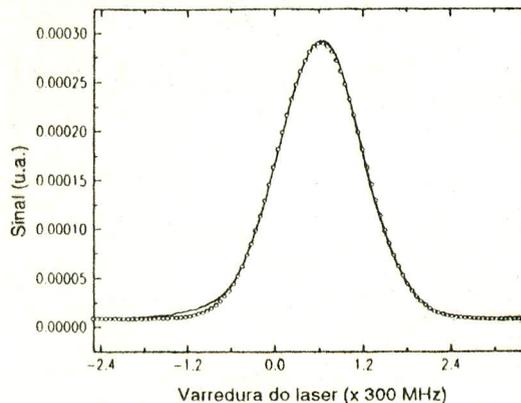
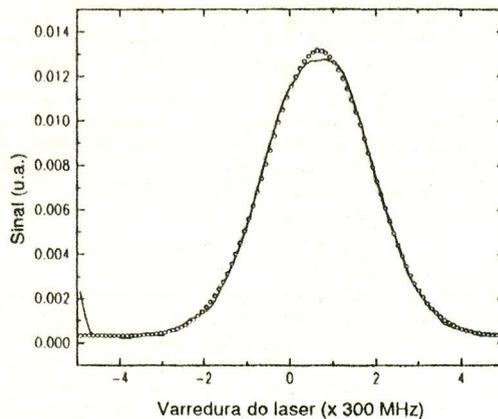
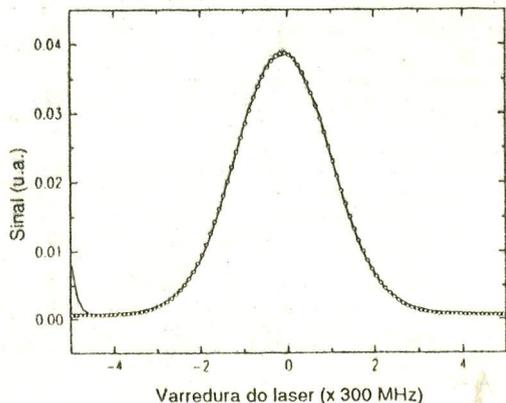


Fig.2- Espectros Doppler das transições estudadas. Linha sólida: curva experimental; círculos: curva teórica; eixo x: varredura do laser (posição arbitrária do zero); eixo y: sinal optogalvânico (unidades arbitrárias); a) 5915.4 Å, lâmpada preenchida com Ar (2 Torr), corrente= 90 mA; b) 5915.4 Å, lâmpada preenchida com Ne (8 Torr), corrente= 80 mA; c) 6056.8 Å, lâmpada preenchida com Ar (2 Torr), corrente= 75 mA.

com velocidade v na direção de um feixe, portanto ressonante com este feixe à frequência $\nu_0 - k \cdot v$, muda sua velocidade para $-v$, através de uma colisão, e fica ressonante com o feixe contrapropagante (ν_0 é a frequência no centro da transição e k é o vetor de onda da radiação).

O peso relativo do sinal homogêneo em relação ao pedestal gaussiano é função dos tempos de vida dos níveis, os quais determinam se um átomo, enquanto permanecer num dado nível, terá ou não tempo para sofrer colisões. O efeito é particularmente evidente em transições que partem do estado fundamental ou estados metaestáveis.

Colisões que mudam a velocidade são usualmente descritas por modelos que distinguem dois regimes (4),(9),(10). Se $\langle \Delta v_c \rangle$ é a variação média da componente de velocidade na direção do feixe em uma colisão, tem-se:

- Colisões "fortes" para as quais $k \langle \Delta v_c \rangle \gg \Delta \nu_D$. Neste regime, uma só colisão termaliza a distribuição de velocidades atômicas, ou seja, tende a reproduzir uma

distribuição gaussiana (9).

- Colisões "fracas", para as quais $k\langle\Delta\nu_c\rangle < \Delta\nu_D$. Neste caso, o sinal é devido a efeitos de múltiplas colisões. Colisões fracas ocorrem normalmente quando há uma grande razão de massas entre os átomos que colidem, como no caso do U e o He. Neste regime, pode-se ainda distinguir dois casos, dependendo se $k\langle\Delta\nu_c\rangle$ for maior ou menor do

que a largura homogênea da transição. No último caso, o sinal saturado aparece como uma superposição de uma função exponencial a um pedestal gaussiano (9),(10).

Neste trabalho, consideramos que o regime de colisões fortes pode ser aplicado para as colisões U-Ar e U-Ne, apesar da grande razão de massas entre estes pares. Nesta condição, o sinal saturado é calculado por Smith e Hansch (11) como:

$$S = A \left[\frac{\gamma^2/4}{\gamma^2/4 + (\nu - \nu_0)^2} + C \exp - \left[\frac{\nu - \nu_0}{\Delta\nu_D} \right]^2 \right] \exp \left[\frac{\nu - \nu_0}{\Delta\nu_D} \right]^2 \quad (1)$$

onde A é um fator de normalização, ν_0 especifica a posição do centro da linha, γ e $\Delta\nu_D$ são as larguras homogêneas (FWHM) e Doppler das transições e o parâmetro C representa o peso relativo entre o sinal homogêneo (lorentziano) e o pedestal gaussiano. A largura Doppler, $\Delta\nu_D$, é determinada através dos espectros obtidos com a técnica convencional (Fig.2) e mantida fixa nestes ajustes. Os parâmetros A, γ e C são os parâmetros ajustáveis.

As Figs. 3a e 3b apresentam espectros obtidos com a técnica de intermodulação para a transição em 5915.4 Å, do ^{238}U , com as lâmpadas contendo Ar e Ne respectivamente. Os círculos nestas figuras referem-se ao ajuste da equação (1) à curva experimental, pelo método dos mínimos quadrados. Através destes ajustes, determinamos $\gamma = 157$ MHz e $C = 9.9$, para a Fig. 4a, e $\gamma = 205$ MHz e $C = 15.7$, para a Fig. 4b. A alargamento homogêneo é, no nosso caso, predominantemente de origem colisional. Como o tempo de vida do nível superior desta transição é $\tau = 205$ ns (12), a largura natural é portanto $\Delta\nu_{\text{natural}} = 1/2\pi\tau = 0.77$ MHz.

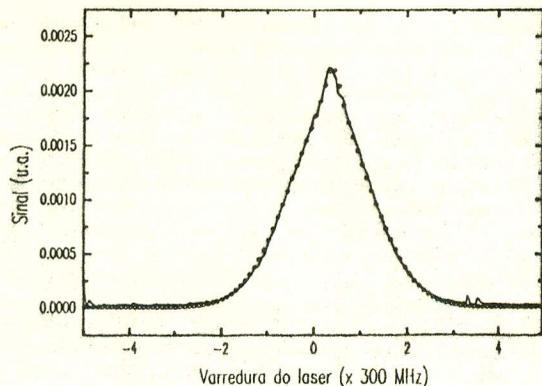
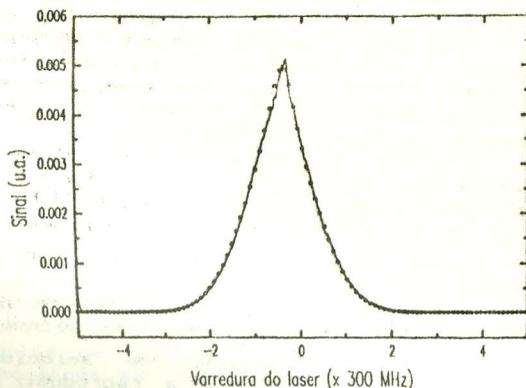


Fig.3- Espectro sub-Doppler da transição em 5915.4 Å. Linha sólida: curva experimental; círculos: curva teórica; a) lâmpada preenchida com Ar (2 Torr); b) lâmpada preenchida com Ne (8 Torr).

O mesmo foi feito para a transição em 6056.8 Å, com a lâmpada contendo Ar. O resultado é apresentado na Fig.4. Determinamos $\gamma = 26$ MHz e $C = 3.75$. Para esta transição o tempo de vida do nível superior é $\tau = 400$ ns (12) e a largura natural é, portanto, $\Delta\nu_{\text{natural}} = 0.40$ MHz.

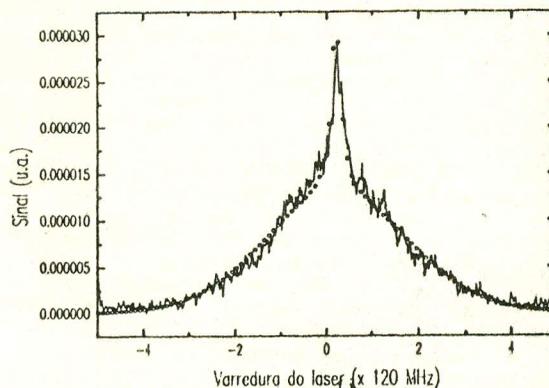


Fig.4- Espectro sub-Doppler da transição em 6056.8 Å, obtido com a lâmpada contendo Ar (2 Torr). Linha sólida: curva experimental; círculos: curva teórica.

Limitações no grau de ajuste da equação (1) aos dados experimentais (Fig.4) podem ser atribuídas ao fato de que a condição de colisões fortes possa não ser estritamente satisfeita para os casos U-Ar e U-Ne, apresentados neste trabalho. Isto ocorre, de fato, para o caso de colisões U-Ne, como assinalado por Barbieri et al (13). Eles sugerem que as colisões U-Ne são de intensidades intermediárias entre os casos extremos de colisões "fortes" e "fracas". Além disto, numa descarga são possíveis colisões não só entre espécies neutras como também entre íons, as quais não foram consideradas neste trabalho. Por estas considerações, uma incerteza de até 20% pode ser atribuída aos valores de γ , apresentados acima.

ABSTRACT

We carried out an analysis of lineshapes in intermodulated optogalvanic spectra of uranium. Typically the lines show a narrow lorentzian peak sitting on a large gaussian background, which is due to velocity-changing collisions. A least-square adjustment allows to estimate the influence of these collisions and to determine the homogeneous and inhomogeneous widths, as a function of pressure and current densities in the discharge.

REFERENCIAS

1. F.M.Penning, *Physica* 8,137 (1928)
2. M.S.Sorem, A.L.Schawlow *Opt. Commun* 5 , 148 (1972)
3. M.D.Levenson, A.L.Schawlow, *Phys.Rev. A* 6,6 (1972)
4. B.Barbieri, N.Beverini, A.Sasso, *Rev.Mod.Phys.* 62,3 (1990)
5. M.G.Destro, C.Schwab, F.C.Cruz, D.Pereira, A.Scalabrin, A.Mirage, *Anais XV ENFMC, Óptica 1992*, Edit. H.Fraguito pgs. 211-214
6. A.Mirage, D.Pereira, F.C.Cruz, A.Scalabrin, *Il Nuovo Cimento D*, 14,6,8 (1992).
7. F.C.Cruz, A.Scalabrin, D.Pereira, *Rev.Bras.Fis.Aplic.Instrum.* 6,3, 119 (1991)
8. W.Demtröder, "Laser Spectroscopy" Springer-Verlag(1988)
9. J.Tenenbaum, E.Miron, S.Lavi, J.Liran, M.Strauss, J.Oreg, G.Erez, *J.Phys.* B16, 4543 (1983)
10. A.Sasso, G.M.Tino, M.Inguscio, N.Beverini, M.Francesconi, *Il Nuovo Cimento* 10D, 8 , 941 (1988)
11. P.W.Smith,T.Hansch, *Phys.Rev.Lett.* 26,13 (1971)
12. E.Miron, R.david, G.Erez, L.A.Levin, *J.Opt.Soc.Am.* vol.69, 2, 256 (1976); L.R.Carlson, J.A.Paisner, E.F. Worden, S.A.Johnson, R.W. Solarz, *J.Opt.Soc.Am* 66, 8, 846 (1976)
13. B.Barbieri, N.Beverini, M.Galli, M.Inguscio, F.Strumia, *Il Nuovo Cimento* 4D, 2 ,172 (1984)