

# COEFICIENTES DE EXCITACIÓN DEL NEÓN VERIFICADOS POR FLUORESCENCIA INDUCIDA POR LÁSER

V. D'Accurso, F. A. Manzano, V. B. Slezak,

*Centro de Investigaciones en Láseres y Aplicaciones (CEILAP), Instituto de Investigaciones Científicas y Técnicas de las Fuerzas Armadas (CITEFA), CONICET, Zufriategui 4380 (1603) Villa Martelli, Provincia de Buenos Aires*

H. O. Di Rocco

*Instituto de Física Arroyo Seco, Facultad de Ciencias Exactas, Universidad Nacional del Centro, Pinto 399 (7000), Tandil, Provincia de Buenos Aires*

Se plantea un sistema de ecuaciones de balance ("rate equations") que describe una descarga de cátodo hueco en Neón excitada en forma resonante con un láser pulsado. En el cálculo intervienen las secciones eficaces de excitación e ionización de los distintos niveles por colisiones electrónicas así como la distribución en energía de los electrones en la descarga. Los resultados del cálculo para las densidades de electrones y de poblaciones de los niveles  $2p$  concuerdan satisfactoriamente con las medidas experimentales del efecto optogalvánico y de fluorescencias  $2p_j-1s_i$  sólo si se toman como valores para las probabilidades de intercambio de población entre niveles  $2p_j$  la milésima parte de los obtenidos mediante el modelo de impulso clásico. La corrección de dichos coeficientes es confirmada al recalcular los mismos mediante la aproximación de Born-Coulomb.

A system of rate equations is proposed to describe a Neon hollow cathode discharge excited by resonant pulsed laser radiation. This model requires knowledge of the excitation and ionization cross sections of different atom levels by electronic collisions as well as the electron energy distribution in the discharge. The results of the calculation for the electron density and  $2p$  levels (Paschen notation) populations agree well the experimental results of the optogalvanic effect and  $2p_j-1s_i$  fluorescence if the population exchange rates by electrons between  $2p_j$  levels are the values obtained by the classical impulse approximation reduced one thousand times. This correction of the rate coefficients is confirmed when these are recalculated by means of the Born-Coulomb approximation.

## I. INTRODUCCIÓN

Las tasas de intercambio de población entre pares de niveles excitados en especies atómicas son coeficientes mal conocidos y de difícil determinación experimental.

Los cálculos teóricos de las mismas se basan en fuertes aproximaciones que llevan a una mala estimación de las secciones eficaces o en modelos más elaborados donde, para simplificar el cálculo, es necesario realizar suposiciones acerca del tipo de acoplamiento que deben ser corroboradas experimentalmente.

El objetivo de este trabajo consiste en estimar el orden de magnitud de las tasas de intercambio por impacto electrónico entre los niveles excitados  $2p_j$  (notación de Paschen) del Neón mediante la comparación entre las medidas de fluorescencia  $2p_j-1s_i$  en una descarga de cátodo hueco

excitada en forma resonante con un láser pulsado y los resultados obtenidos al resolver un sistema de ecuaciones de balance que describe dicha situación experimental.

Para realizar el cálculo se utilizan dos modelos diferentes: el de aproximación de impulso clásico y el de aproximación de Born usando funciones de onda aproximadas del tipo Whittaker.

## II. RESULTADOS Y DISCUSIÓN

Los niveles del Neón en consideración son el estado fundamental, la primera configuración excitada  $1s_1$  compuesta por cuatro niveles ( $2 \leq i \leq 5$ ), dos de los cuales son metaestables ( $1s_5; 1s_3$ ) y dos radiativos ( $1s_4; 1s_2$ ), y la segunda configuración excitada  $2p_j$  ( $1 \leq j \leq 10$ ) compuesta por diez niveles fuertemente acoplados por radiación a los  $1s_i$  ( $\tau \cong 20$  nseg). La

\*\* Investigador CONICET

separación en energía entre los niveles 2p es pequeña (de 0.6 eV a 0.02 eV) siendo las transiciones entre los mismos dipolarmente prohibidas.

Los niveles excitados son poblados por medio de colisiones con electrones de una descarga continua de cátodo hueco realizada en Neón a baja presión (5 Torr). Un pulso de un láser de colorantes, ( $\tau \cong 6$  nseg) sintonizado en  $\lambda = 594,5$  nm ilumina la descarga en la región de luminiscencia negativa y transfiere parte de la población de  $1s_5$  a  $2p_4$  provocando un incremento substancial del número de átomos en el nivel superior respecto del estado estacionario. Esta sobrepoblación es destruída por fenómenos radiativos a  $1s_i$  y por colisiones electrónicas que la redistribuyen entre los otros niveles 2p; los que a su vez decaen radiativamente a los  $1s_i$ . La medida de las variaciones máximas de intensidad de fluorescencia respecto de la intensidad estacionaria para distintas transiciones a partir de diferentes niveles 2p así como la diferencia temporal entre los máximos de intensidad ponen en evidencia la magnitud del intercambio 2p-2p (Fig. 1)

El modelo teórico está basado en un sistema de ecuaciones de balance para las densidades de población de los 4 estados excitados  $1s$  y los 10 estados excitados  $2p$  del Neón, los electrones, los iones atómicos y los iones moleculares, imponiendo además la condición de neutralidad de carga. Los principales mecanismos de excitación y desexcitación que serán tomados en cuenta en el modelo se presentan en la Fig. 2. A éstos se agregan los procesos de recombinación a tres cuerpos, recombinación disociativa, atrapamiento de radiación, difusión de metaestables y pérdidas de cargas del volumen en estudio<sup>1</sup>.

Las funciones de distribución en energía de los electrones y átomos para distintas corrientes así como las secciones eficaces para los distintos procesos se obtienen de la bibliografía y de resultados teórico-experimentales<sup>1-3</sup>.

Las tasas de excitación y desexcitación de un nivel 2p a otro 2p por impacto electrónico se estimaron usando la aproximación de impulso clásico en la cual se desprecia la interacción de los electrones que producen el cambio con el núcleo apantallado. Debido a la pequeña separación en energía entre los niveles 2p la energía de los electrones interactuantes con el átomo es baja y en consecuencia la aproximación utilizada conduce a una sobreestimación de las tasas. Con la finalidad de realizar una corrección se introduce un coeficiente multiplicativo paramétrico ( $m$ ) en dichas tasas, que se determina ajustando las variaciones de población de los niveles  $2p_2, 2p_3, 2p_4$  y  $2p_5$  calculadas con las

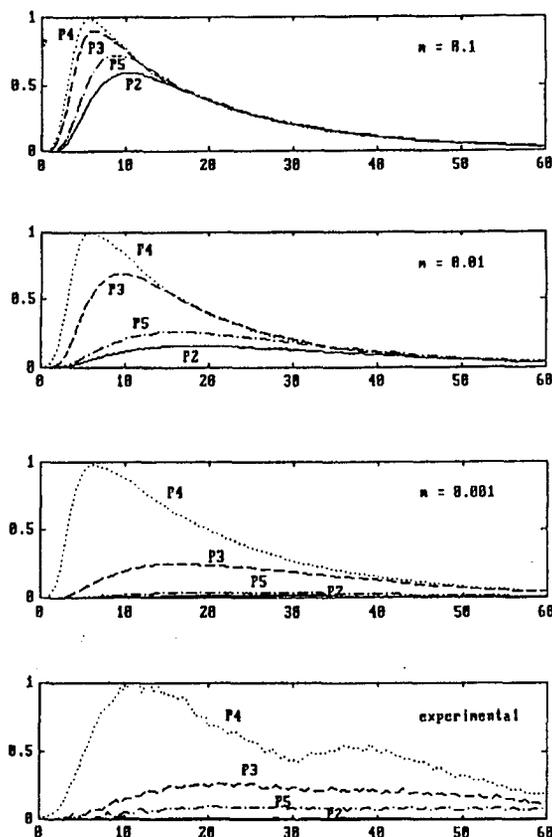


Fig. 1: Poblaciones relativas de algunos niveles 2p vs. tiempo obtenidas experimentalmente y calculadas para distintos valores m.

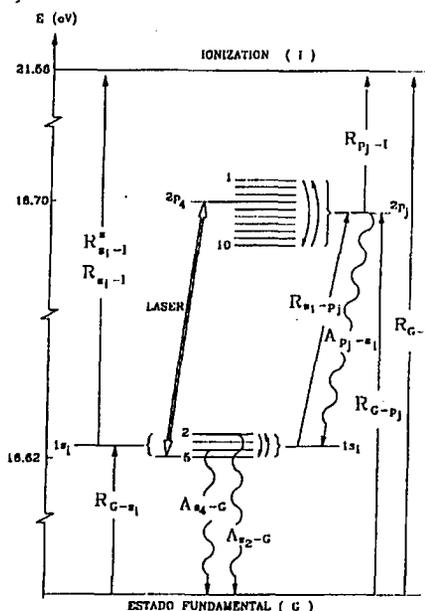


Fig. 2: Esquema de los principales mecanismos de excitación y desexcitación.

determinadas a partir de medidas de fluorescencias (Fig. 1).

Como es de esperar, cuanto más cercano a la unidad sea el valor de dicho coeficiente las magnitudes del cambio de las poblaciones serán similares pues las tasas de excitación y desexcitación de un nivel 2p a otro aumentan. Se observa que la diferencia temporal entre el máximo de la población de 2p<sub>4</sub> (nivel bombeado) y el de otro nivel 2p<sub>j</sub> vecino se incrementa a medida que m disminuye y la separación en energía entre ellos aumenta.

Al comparar estos resultados con los obtenidos experimentalmente se puede observar que el valor para el que se obtiene mejor ajuste es m = 0,001. La determinación fue realizada para el intercambio de

$$\langle v\sigma \rangle = \{1,2 \times 10^{-9} \times (13,6/\Delta E)^{1,5} \times e^{-\beta} \times [\beta(\beta+3)]^{0,5} \times$$

$$[(21,5 - E_{\text{sup}})/(21,5 - E_{\text{inf}})]^{1,5}\} / (\beta + 0,84)$$

donde E<sub>sup</sub>, E<sub>inf</sub> y ΔE son las energías de los niveles superior, inferior y su diferencia, β = ΔE/kT donde T es la temperatura de los electrones más lentos (4.000K).

Los resultados obtenidos mediante este modelo se muestran en la Tabla II. De la comparación con la Tabla I puede observarse que las tasas de excitación y desexcitación entre los niveles 2p<sub>2</sub>, 2p<sub>3</sub>, 2p<sub>4</sub> y 2p<sub>5</sub> coinciden dentro de un factor menor que 5.

Tasa x 10 <sup>8</sup> (cm <sup>3</sup> /s)	P <sub>1</sub>	P <sub>2</sub>	P <sub>3</sub>	P <sub>4</sub>	P <sub>5</sub>	P <sub>6</sub>	P <sub>7</sub>	P <sub>8</sub>	P <sub>9</sub>	P <sub>10</sub>
P <sub>1</sub>		7,07	2,08	9,79	5,45	6,16	3,20	4,34	5,46	1,33
P <sub>2</sub>	1,29		192,	408,	119,	25,9	9,54	8,86	9,56	0,90
P <sub>3</sub>	1,10	557,		8914,	854,	38,1	10,8	7,66	7,42	0,45
P <sub>4</sub>	1,01	233,	1752		540,	6,26	1,61	1,04	0,98	0,05
P <sub>5</sub>	0,91	110,	274,	880,		19,4	4,46	2,64	2,41	0,12
P <sub>6</sub>	0,52	12,6	6,42	5,38	10,3		124,	26,5	19,2	0,51
P <sub>7</sub>	0,41	7,31	2,88	2,17	3,71	195,		102,	48,9	0,55
P <sub>8</sub>	0,30	3,72	1,12	0,77	0,21	23,1	56,2		396,	0,73
P <sub>9</sub>	0,25	2,72	0,73	0,49	0,75	11,4	18,4	270,		0,43
P <sub>10</sub>	0,08	0,36	0,06	0,04	0,05	0,46	0,32	0,77	0,66	

Tabla I: Tasas calculadas con el impulso clásico y corregidas con m=0,001 ( p<sub>j</sub> → p<sub>k</sub> )

los niveles mencionados debido a una limitación espectral del equipamiento experimental disponible, extrapolándose el resultado a todos los otros niveles. En la Tabla I se muestran las tasas de excitación y desexcitación entre los niveles 2p corregidas por el coeficiente m.

La corrección aplicada a dichos coeficientes es confirmada al recalcular los mismos con otro modelo. En éste se considera que el electrón excitado en un nivel 2p<sub>j</sub>, a sólo 3 eV del nivel de ionización, se mueve alrededor de una capa casi llena sometido a una carga efectiva de Z<sub>ef</sub> ~ 1. La expresión para las tasas basadas en las propiedades de las secciones eficaces en la aproximación de Born, usando funciones de onda aproximadas tipo Whittaker para el átomo, es:

Se están realizando cálculos más detallados, teniendo en cuenta la mezcla de niveles 2p debido a la interacción spin-órbita, para establecer los factores angulares que intervienen en la expresión semiempírica de las tasas de pasaje del estado j al k por impacto electrónico:

$$\langle v\sigma(j,k) \rangle = 10^{-8} \times (Ry/\Delta E)^{1,5} \times [e^{-\beta}/(2I_0+1)] \times$$

$$(E_1/E_0)^{1,5} \times \sum Q_{\kappa}(j,k) G_{\kappa}(\beta)$$

donde E<sub>1</sub>, E<sub>0</sub> y ΔE son las energías de ionización de los niveles final, inicial y su diferencia, Ry es la constante de Rydberg, β = ΔE/kT y Q<sub>κ</sub>(j, κ) es un factor angular que depende de los momentos angulares de los estados j y k.

Tasa x 10 <sup>8</sup> (cm <sup>3</sup> /s)	P <sub>1</sub>	P <sub>2</sub>	P <sub>3</sub>	P <sub>4</sub>	P <sub>5</sub>	P <sub>6</sub>	P <sub>7</sub>	P <sub>8</sub>	P <sub>9</sub>	P <sub>10</sub>
P <sub>1</sub>		141,	43,0	205,	116,	144,	77,4	109,	141,	33,2
P <sub>2</sub>	23,5		446,	1416,	573,	297,	132,	151,	179,	27,2
P <sub>3</sub>	20,6	1281,		12845,	3312,	1114,	474,	524,	610,	87,5
P <sub>4</sub>	19,2	795,	2510,		1225,	255,	105,	113,	131,	18,2
P <sub>5</sub>	17,6	521,	1048	1983,		514,	203,	210,	240,	31,8
P <sub>6</sub>	11,1	137,	179,	210,	262,		487,	285,	284,	26,0
P <sub>7</sub>	9,28	94,9	118,	135,	160,	757,		843,	721,	50,2
P <sub>8</sub>	7,09	58,8	70,7	78,4	89,8	239,	454,		1382,	38,8
P <sub>9</sub>	6,16	46,8	55,4	61,0	68,9	160,	262,	932,		32,3
P <sub>10</sub>	2,03	9,99	11,2	11,9	12,9	20,7	25,7	36,8	45,5	

Tabla II: Tasas calculadas en la aproximación de Born usando funciones de onda tipo Whittaker ( $p_j \rightarrow p_k$ )

De la expresión para el factor angular se puede demostrar que solamente hay que calcular el orden multipolar  $K = 2$  (rigurosamente) mientras que otras reglas de selección válidas en el acoplamiento LS puro son violadas en mayor o menor medida por el apartamiento de dicho esquema.

### III. CONCLUSIONES

De la buena concordancia entre las medidas de fluorescencia inducida por láser para varias transiciones  $2p_j-1s_i$  y las predicciones para la redistribución de población entre los niveles  $2p_j$  de un modelo de descarga en cátodo hueco ha sido estimado el orden de magnitud de las tasas de intercambio por impacto electrónico entre las poblaciones de dichos niveles. Estas estimaciones de ven confirmadas al realizar el cálculo de dichas tasas en la aproximación de Born usando funciones aproximadas de tipo Whittaker para

describir el átomo, encontrándose coincidencias entre estos valores y los predichos por el modelo dentro de un factor menor que 5.

Se concluye que el cálculo de las tasas utilizando el modelo de impulso clásico sobreestima los valores en tres órdenes de magnitud.

### REFERENCIAS

1. V. D'Accurso: *Tesis de Licenciatura de la carrera de Ciencias Físicas de la U.B.A.* (1993).
2. V. B. Slezak, F. A. Manzano y V. D'Accurso: *IV Encuentro Latinoamericano sobre Óptica, Láseres y sus Aplicaciones*, México (1993).
3. F. A. Manzano, V. D'Accurso y V. B. Slezak: *IV Encuentro Latinoamericano sobre Óptica, Láseres y sus Aplicaciones*, México (1993).