

# ESTUDIO DEL EFECTO OPTOGALVANICO DINAMICO EN NEON

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

Centro de Investigaciones en Lasers y Aplicaciones, Instituto de Investigaciones Cientificas y Tecnicas de las Fuerzas Armadas (CITEFA) y CONICET, Zufriategui 4380,(1603) Villa Martelli, Buenos Aires.

Por medio de ecuaciones de "rate" se describe la evolución de la población de un par de niveles de Neón en una descarga de cátodo hueco, cuando ésta es atravesada por radiación de un laser de colorante bombeado por  $N_2$ , sintonizado en una transición  $1s-2p$ .

Este modelo predice la señal optogalvánica obtenida en el laboratorio, que consiste en un aumento inicial de corriente y un decremento posterior, hasta el establecimiento de la población estacionaria en el nivel metastable del Neón, así como los tiempos característicos de la misma, a partir de los parametros que describen la descarga. Se pretende que este modelo describa el fenomeno en estado no estacionario, a diferencia de otros trabajos, donde es utilizada la aproximación de estado estacionario sin tomar en cuenta las variaciones rápidas de la señal.

## INTRODUCCION

Cuando se irradia una descarga gaseosa a una frecuencia resonante con una transición de un átomo o molécula ocurren cambios en las propiedades eléctricas de la descarga. Este fenómeno se denomina efecto optogalvánico (EOG) y es particularmente útil para espectroscopía de alta resolución, por la simpleza de implementación, alta sensibilidad y selectividad.

Existen modelos teóricos que describen el EOG en la columna positiva de una descarga gaseosa cuando la radiación proviene de un láser de colorante continuo modulado mecánicamente<sup>1,2,3</sup>.

En esas experiencias, al efectuarse el pasaje de un estado estacionario sin láser a otro con láser se observan transitorios<sup>4</sup> que han sido estudiados en forma empírica utilizando láseres pulsados<sup>5</sup> y teóricamente en base a modelos fenomenológicos<sup>6,7</sup>.

En el caso de Ne para transiciones desde niveles metaestables ( $1s_5$  y  $1s_3$  en notación de Paschen) y cuasimetaestables ( $1s_4$ ) estos transitorios consisten en un incremento de corriente seguido por un decremento, como se muestra en la fig. 1, donde la señal promediada ha sido obtenida en nuestro laboratorio a partir de una lámpara comercial de cátodo hueco donde el gas "buffer" Ne es excitado en la transición  $1s_5-2p_4$  (594 nm) por un láser de colorante pulsado.

En este trabajo se presenta un modelo que predice cualitativamente el comportamiento temporal de la señal a partir de ecuaciones de "rate" que describen una descarga de cátodo hueco, teniendo en cuenta la perturbación causada en las poblacio-

nes del par de niveles  $1s_5$  y  $2p_4$  del Ne por un pulso de láser de colorante bombeado por un láser de  $N_2$  de ATAM  $\tau_p = 6$  ns.

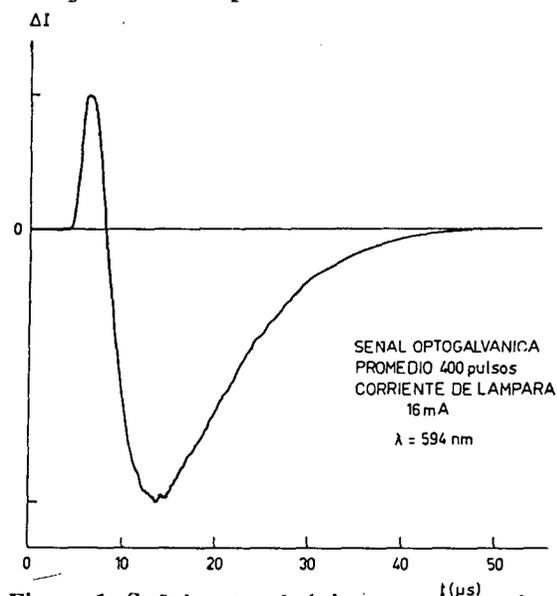


Figura 1: Señal optogalvánica experimental.

## TEORIA

El régimen de descarga considerado es de "glow" negativo, caracterizado por plasma neutro y dominado por fenómenos de excitación e ionización por impacto electrónico desde los estados fundamental y excitados  $1s$  y  $2p$ , de intercambio energético entre átomos de Ne en los estados  $1s$ , de recombinación de tres cuerpos y de difusión. Los procesos que son tomados en cuenta en el modelo se indican en el esquema de niveles de la fig.2.

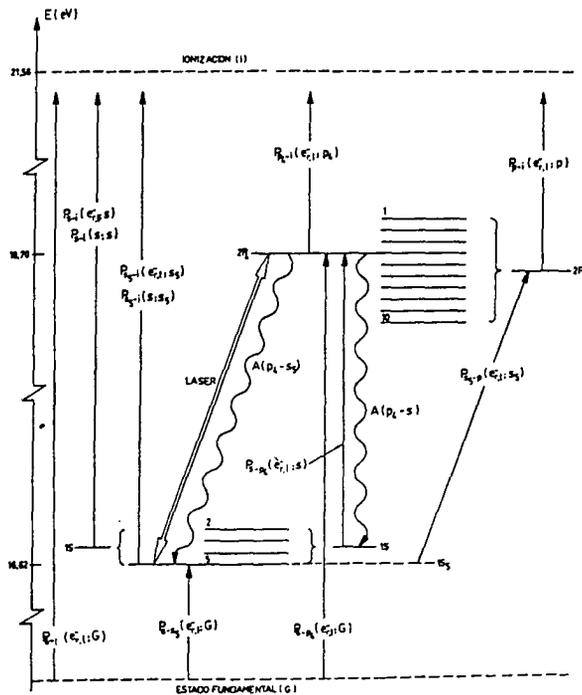


Figura 2: Esquema de excitación del Ne, donde  $P_{x-y}(e_r, x)$  es la probabilidad de transición desde  $x$  a  $y$  y por impacto electrónico con electrones rápidos o lentos.

Para el cálculo de las probabilidades de excitación e ionización se consideran dos conjuntos de electrones con distribución maxwelliana de velocidades a temperaturas  $T_r$  y  $T_e$  respectivamente ( $T_r \gg T_e$ ) con una relación entre las concentraciones  $n_r/n_r$  del orden de  $100-1000^8$  y con  $n_e \approx 10^{13} \text{ cm}^{-3}$ .

Las ecuaciones de "rate" que describen la evolución de la concentración de las poblaciones de los niveles  $1s_5(M_5)$  y  $2p_4(N_4)$  y de los electrones  $n_e$  son las siguientes:

$$\frac{dM_5}{dt} = (P_{g-s_5} n_r + P'_{g-s_5} n_e) G + A_{p_4-s_5} N_4 - (P_{s_5-p} n_r + P'_{s_5-p} n_e) M_5 - P_{m-m}(s; s_5) \sum_{i=2}^5 M_i M_5 - (P_{s_5-i} n_r + P'_{s_5-i} n_e) M_5 + \sigma I (l) (N_4 - M_5) \quad (1)$$

$$\frac{dN_4}{dt} = (P_{g-p_4} n_r + P'_{g-p_4} n_e) G + (P_{s-p_4} n_r + P'_{s-p_4} n_e) \sum_{i=2}^5 M_i - A_{p_4-s} N_4 - (P_{p_4-i} n_r + P'_{p_4-i} n_e) N_4 - \sigma I (l) (N_4 - M_5) \quad (2)$$

$$\frac{dN_e}{dt} = (P_{GI} n_r + P'_{GI} n_e) G + (P_{p-i} n_r + P'_{p-i} n_e) \sum_{i=1}^{10} N_i + (P_{s-i} n_r + P'_{s-i} n_e) \sum_{i=2}^5 M_i + \frac{P_{m-m}(s; s_5)}{2} \sum_{k \leq i}^5 M_i M_k - P_{rec} n_e^2 - P_{dif} n_e \quad (3)$$

donde

$G, M_i, N_i$ : densidad de población de los niveles  $G, 1s_i, 2p_i$  a una presión de 5 Torr de Ne y corriente estacionaria de 20 mA en ausencia de láser.

$A_{p-s}$ : coeficiente de Einstein de emisión espontánea de  $2p_4$  a todos los  $1s_i$ .

$P_{m-m}$ : probabilidad de ionización por colisión entre átomos de Ne en  $1s = \sigma_{mm} \langle v \rangle$ ,<sup>11</sup> donde  $\sigma_{mm}$  es la sección eficaz del proceso y  $\langle v \rangle$  la velocidad media relativa de los átomos a la temperatura del gas en la descarga ( $T_g = 2000 \text{ }^\circ\text{K}$ ).

$P_{x-y}, P'_{x-y}$ : probabilidad de excitación por colisión Ne - e desde el nivel  $x$  al  $y = \int_{v_u}^{\infty} \sigma_{xy} v f(v) dv$ , donde  $v_u$  es la velocidad umbral para el proceso de excitación de  $x$  a  $y$ ,  $f(v)$  es la distribución de Maxwell a temperatura  $T_r$  para  $P_{x-y}$  y  $T_e$  para  $P'_{x-y}$  y  $\sigma_{xy}$  es la sección eficaz del proceso  $x \rightarrow y$ .

Las secciones eficaces de excitación y de ionización han sido extraídas de ref.12,13 y 14; las distribuciones de velocidades son calculadas a temperaturas electrónicas  $T_e = 4000 \text{ }^\circ\text{K}$  y  $T_r$ , siendo  $T_r$  y  $n_r$  los parámetros de optimización del modelo dentro de los límites impuestos por una descarga de "glow" negativo ( $T_r \gg T_e$  y  $n_r/n_r \sim 100-1000$ ).

$\sigma$ : coeficiente de absorción para la transición  $1s_5-2p_4$ , ensanchada Doppler a la temperatura  $T_g$ .

$I(t)$ : intensidad del láser en fotones  $s^{-1} =$

$$I_0 \frac{\text{sen}^2 (2 (t/2\tau_p - 0.5))}{[2 (t/2\tau_p - 0.5)]^2}$$

con  $\zeta_p = 6 \cdot 10^{-9}$  seg e  $I_0 = 1,7 \cdot 10^{15}$  fotones/seg (0,5 mJ).

$P_{rec}$ : probabilidad de recombinación  $Ne^+ + e^- + e^- \rightarrow Ne + e^-$ .

$P_{rec} = 5 \cdot 10^{-12}$  cm<sup>3</sup>/s para  $T_e \sim 4000$  °K y  $n_e \sim 10^{13}$  cm<sup>-3</sup>.

$P_{dif}$ : "rate" de difusión ambipolar de  $e^-$  en Ne. Para campo eléctrico bajo ( $E < 1$  V/cm Torr), suponiendo temperatura iónica  $\ll T_e$  y movilidad (K) de  $Ne^+ \ll K$  de los electrones e independiente de la temperatura  $T_g$ ,  $P_{dif} = 8,75 \cdot 10^4$  s<sup>-1</sup> para un radio de descarga de 0,3 cm<sup>16</sup>.

La corriente en la lámpara estará dada por la ecuación:

$$i(t) = e n_e(t) v_d \pi R^2 \quad (4)$$

donde  $v_d$  es la velocidad de arrastre de los electrones en un campo E y R es el radio de la descarga. Por lo tanto la señal optogalvánica en primera aproximación seguirá el comportamiento de la densidad electrónica  $n_e$ .

## DISCUSION

Se calcularon numéricamente las densidades de población  $M_5^0$  y  $N_4^0$  y de electrones  $n_e^0$  en ausencia de láser para valores de  $n_r$  en el rango  $10^9$ - $10^{11}$  cm<sup>-3</sup> y  $T_r$  entre  $3 \cdot 10^4$  y  $10^5$  °K, dando como resultado valores aceptables para  $M_5^0$ ,  $N_4^0$  y  $n_e^0$ . Para el caso  $n_r = 1,8 \cdot 10^{11}$  cm<sup>-3</sup> y  $T_r = 45000$  °K se obtienen los valores:

$$M_5^0 = 8,5 \cdot 10^{12} \text{ cm}^{-3}$$

$$M_5^0 = 1,7 \cdot 10^{10} \text{ cm}^{-3}$$

$$M_e^0 = 2,3 \cdot 10^{13} \text{ cm}^{-3}$$

donde  $n_e^0$  coincide con el valor publicado para descargas en cátodo hueco<sup>9</sup> y los valores de  $M_5^0$  y  $N_4^0$  son del mismo orden de magnitud que los considerados por otros autores para el mismo tipo de descargas<sup>17</sup>.

De la concordancia puesta en evidencia en el párrafo anterior se desprende que los procesos tomados en cuenta en el modelo son los preponderantes y que los coeficientes de las ecuaciones asociados a ellos, calculados a partir de las secciones eficaces, han sido bien estimados.

Los valores antes mencionados son impuestos

como condiciones iniciales para la resolución de las ecuaciones (1)-(3) perturbadas por el láser. Los resultados para la densidad relativa de electrones ( $n_e - n_e^0$ ) se presentan en la fig. 3a para  $t < 90$   $\mu$ s y en la fig.4 para  $t < 45$   $\mu$ s. Se puede observar que el modelo reproduce en forma satisfactoria el doble signo de la señal optogalvánica experimental (fig.1), así como la amplitud del incremento de corriente obtenida en el laboratorio ( $\sim 10^{-4}$ ). Además predice correctamente el tiempo de recuperación final del valor de la corriente estacionaria (10  $\mu$ s).

De la fig.3 y considerando la ecuación (3) es posible concluir que la parte positiva de ( $n_e - n_e^0$ ) es el resultado de la evolución temporal de varios fenómenos simultáneos. El aumento de corriente que se produciría fundamentalmente debido al crecimiento de  $N_4$  es atenuado por la disminución de  $M_5$ . Debido a los diferentes tiempos de recuperación de las poblaciones  $N_4^0$  y  $M_5^0$  (fig.3b, 3c y 5) la corriente decrece hasta valores por debajo de  $n_e^0$ .

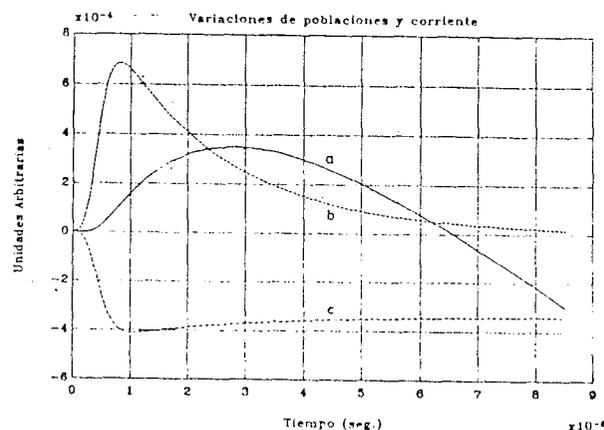


Figura 3: a: Variación de la densidad electrónica  $n_e \cdot 10^{-13}$  vs., tiempo. b: Variación de la población  $2p4 \cdot 10^{-8}$  vs. tiempo; valor del máximo =  $3,4 \cdot 10^4$ . c: Variación de la población de  $1s_5 \cdot 10^{-11}$  vs. tiempo; valor del mínimo = 41.

Por último, del análisis de fig.4 y 5 se concluye que la evolución de la corriente a su valor estacionario está principalmente ligada al tiempo de recuperación de los valores de equilibrio de la población  $M_5$ .

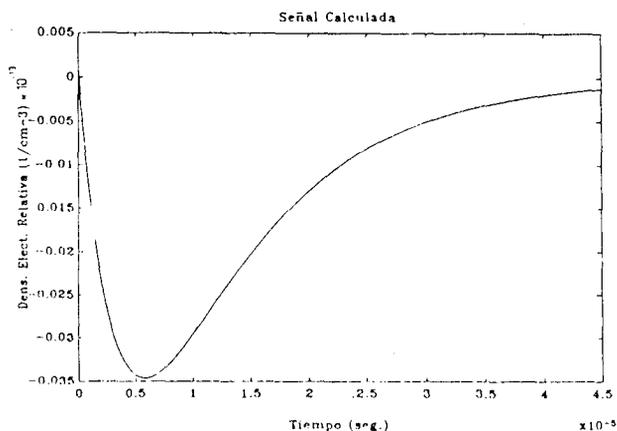


Figura 4: Variación de la densidad electrónica ( $n_e - n_e^0$ ) .  $10^{-1}$  vs. tiempo.

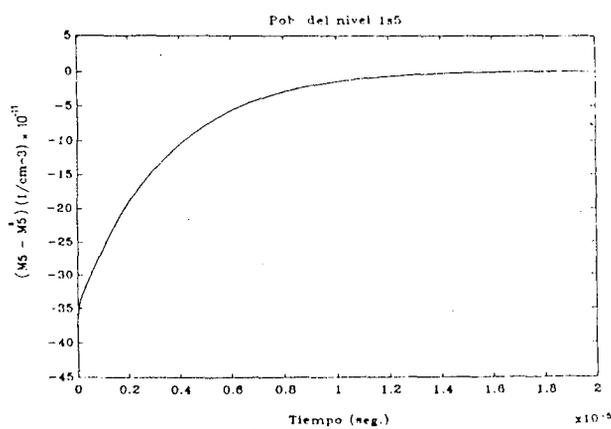


Figura 5: Variación de la población del nivel metaestable vs. tiempo.

## CONCLUSIONES

El modelo propuesto a partir de magnitudes microscópicas predice adecuadamente la dinámica de la señal optogalvánica observada en descargas de cátodo hueco y de las poblaciones de los estados  $1s$  y  $2p$  del Ne.

Para mejorar la predicción de los tiempos característicos de la primera parte de la señal se está trabajando en la inclusión para el cálculo de la corriente de una distribución de velocidades de los electrones generados por el láser así como en una descripción más precisa de la geometría de la descarga.

Con el fin de reducir el número de parámetros del modelo y ajustar la relación de amplitud entre la señal positiva y negativa se propone describir con una única función de distribución la energía de los electrones en la descarga y tener en cuenta

la redistribución de las poblaciones de los niveles  $2p$  y de  $1s$  y la interacción del material arrancado del cátodo con el gas.

## AGRADECIMIENTOS

Los autores agradecen al Ing. Rolando Korch por su colaboración en la determinación de la respuesta impulsiva de la lámpara de cátodo hueco. Además agradecen al Sr. Carlos Morales la realización de las figuras y al Sr. José Silvestri por el apoyo técnico brindado.

## BIBLIOGRAFIA.

- [1] J.E.Lawler: Phys.Rev.A 22,1025(1980).
- [2] D.K.Doughty y J.E.Lawler: Phys.Rev.A 28,773(1983).
- [3] A.Sasso, M.Ciocca y E.Arimondo : JOSA B 5,1484(1988).
- [4] K.C.Smyth y P.K.Schenck : Chem.Phys.Lett. 55,466(1978).
- [5] Y. Yasuda, N.Sokabe y A.Murai: Opt.Comm. 55,319(1985).
- [6] E.Miron, I.Smilanski, J.Liran, S.Lavi y G. Erez: IEEE J.Quantum Electron. QE-15,194(1979).
- [7] G.Ercz, S.Lavi y E.Miron : IEEE J.Quantum Electron. QE-15,1328(1979).
- [8] C.S.Willett : "Introduction to gas laser: population inversion mechanisms"; Pergamon Press, Oxford (1974).
- [9] R.A.Keller, B.E.Warner, E.F.Zalewski, P. - Dyer, R.Engleman Jr. y B.A.Palmer: Journal de Physique 44, C7-23(1983).
- [10] Atomic Transition Probabilities, NSRDS - NBS4, Vol.I, Washington(1966).
- [11] E.E.Ferguson : Phys.Rev. 128,210(1962).
- [12] S.E.Frish y V.F.Revald : Opt.Spec. 15,395-(1963).
- [13] V.I.Ochkur y A.M.Petrunkin : Opt.Spec. 14, 245 (1963).
- [14] V.F.Revald : Opt.,Spec. 18,318(1965).
- [15] E.Hinnov y J.G.Hirschberg : Phys.Rev. 125,-795(1962).
- [16] E.W.Mc.Daniel : "Collision phenomena in ionize gases", J.Wiley, New York (1964).
- [17] E.F.Zalewski, R.A. Keller y R.Engleman, Jr.: J.Chem.Phys. 70,1015(1979).