

ATRAPAMIENTO DE RADIACIÓN EN DESCARGAS DE LUMINISCENCIA NEGATIVA EN NEÓN

RADIATION TRAPPING IN NEON NEGATIVE GLOW DISCHARGES

D'Accurso V. , Manzano F. A.

Centro de Investigaciones en Láseres y Aplicaciones (CEILAP- UNIDEF- CONICET)
Instituto de Investigaciones Científicas y Técnicas para la Defensa (CITEDEF)
J.B. La Salle 4397 (B1603ALO). Villa Martelli, Pcia. de Buenos Aires
e-mail: vdacurso@citedef.gob.ar

Recibido: 04/12/13; aceptado: 30/05/14

Se estudia la dinámica del atrapamiento de fluorescencia producida en una descarga de luminiscencia negativa en cátodo hueco al ser iluminada con pulsos de un láser de colorante sintonizado con una transición atómica. Este tipo de descargas en Neón se caracterizan por una elevada densidad de población de la primera configuración excitada que, sumada a su gran sección eficaz de absorción, se manifiesta en un importante atrapamiento de la radiación generada por decaimientos desde la segunda configuración. La perturbación en las poblaciones producida por pulsos láser resonantes con una transición afecta el valor del atrapamiento modificando la dinámica de la emisión fluorescente lo cual podría conducir a interpretaciones erróneas en experiencias de fluorescencia inducidas. Por otro lado, el fuerte acoplamiento radiativo y colisional de las poblaciones de ambas configuraciones y los procesos colisionales intraconfiguración producen una variación temporal de la magnitud del atrapamiento de fluorescencia entre otros niveles. En este trabajo son discutidos los resultados obtenidos en experiencias de fluorescencia inducidas al excitar la transición $1s_5 \rightarrow 2p_2$ (notación de Paschen) y detectando la emisión de $2p_2$ a los niveles $1s_2$, $1s_3$ y $1s_4$ para distintas intensidades de radiación láser. Se pone de relevancia, en el rango de altas intensidades de irradiación, la importancia de tener en cuenta la dinámica del atrapamiento de radiación para la correcta determinación de la densidad de población del nivel excitado. A sí mismo, se presenta la corrección a introducir en un sistema de ecuaciones de cuya resolución se obtienen los valores absolutos de las evoluciones de las densidades de población de los niveles de la primera configuración a partir de la medición de las variaciones de las fluorescencias de distintos niveles excitados $2p_j$

Palabras claves: Descargas eléctricas. Espectroscopía de estados excitados. Neón

We study fluorescence radiation trapping in a negative glow, hollow cathode discharge, excited by a pulsed dye laser. These discharges in Neon are known to have a large population density in the first excited configuration which, in addition with a large absorption cross section, shows a noticeable radiation trapping generated by decay processes from the second configuration. Laser pulses, tuned at a given transition, change the populations and, in turn, the radiation trapping. This alters the dynamics of the fluorescence emission; a fact that may lead to wrong conclusions. In addition, the strong radiative and collisional coupling between the two configurations, and the collisional processes within each configuration, induce a time-varying fluorescence trapping between other levels. In this paper we discuss results we found in induced-fluorescence measurements, generated by exciting the $1s_5 \rightarrow 2p_2$ transition (Paschen annotation) and detected by registering the emission from the $2p_2$ to the $1s_2$, $1s_3$ and $1s_4$ levels, at different laser fluence. We stress that, at high laser fluence, radiation trapping dynamics must be taken into account to correctly determine the excited level population density. On the other hand, a modification to be introduced in the construction of a set of equations whose solution return the time evolution of the population of the first configuration knowing the fluorescence changes of excited $2p_j$ levels makes is proposed.

Keywords: Electrical discharges. Excited states spectroscopy. Neon

Introducción

El átomo de Neón presenta 4 niveles en la primera configuración excitada ($1s_i$, $2 \leq i \leq 5$, notación de Paschen) y 10 niveles en la segunda configuración ($2p_j$, $1 \leq j \leq 10$) (figura 1). En la primera configuración, los niveles $1s_3$ y $1s_5$ son niveles metaestables y los niveles $1s_2$ y $1s_4$ son radiativos con tiempos de vida natural de 1,6 ns y 21 ns respectivamente. Los niveles de la segunda configuración excitada están acoplados radiativamente con los de la primera configuración y tienen tiempos de vida natural del orden de 20 ns.

Debido al importante valor de sección eficaz de absorción de radiación entre los niveles $2p_j$ y $1s_i$, del orden de 10^{-12} cm², existe una alta probabilidad que el

fotón emitido por un átomo en $2p_j$ sea absorbido por otro vecino en $1s_i$ dando como consecuencia un mayor tiempo de vida media de los niveles $2p_j$. Este proceso es conocido en la literatura como atrapamiento de radiación el cual se describe con el coeficiente de transparencia del medio.

Los átomos presentes en el plasma de una descarga están sometidos a colisiones las cuales producen intercambios de población intra e inter configuracional que, sumada a procesos radiativos, conducen a una distribución estacionaria de las poblaciones en los distintos niveles de energía del átomo.

Al iluminar la descarga con un pulso luminoso sintonizado con la transición $1s_i \rightarrow 2p_j$ se alteran las

poblaciones involucradas por la irradiación así como la de los niveles vecinos. Tales perturbaciones afectan de distinta forma los valores de transparencia del medio de cada una de las posibles transiciones radiativas, lo cual debe ser tenido en cuenta en experiencias de fluorescencia inducida.

En este trabajo se enfatiza que el fenómeno de atrapamiento de radiación modifica la dinámica de fluorescencia desde el nivel excitado y que, para altas intensidades del pulso de excitación, el coeficiente de transparencia debe incluir el fenómeno de fluorescencia estimulada.

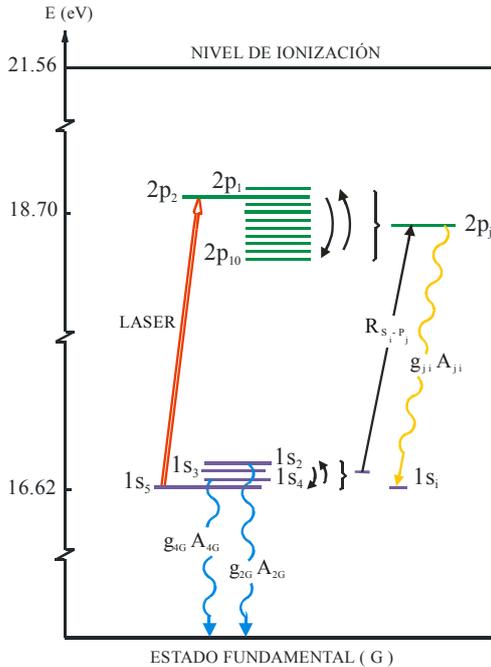


Figura 1. Esquema de los primeros niveles de energía del átomo de Neón.

Teoría

De acuerdo a la teoría de atrapamiento de radiación^[1,2], las intensidades de las fluorescencias detectadas desde un dado $2p_j$ a distintos $1s_i$ varían no sólo con su probabilidad de transición (A_{ji}) y de la densidad de población instantánea de los niveles superiores ($P_j(t)$), sino también con la densidad de población instantánea de los niveles inferiores $1s_i$ ($S_i(t)$) de la siguiente forma:

$$I_{ji}(t) = \Omega R_{ji} g_{ji}(t) A_{ji} P_j(t) \quad (1)$$

donde

$$g_{ji}(t) = \frac{0,86}{0,86 + \sigma_{ji} S_i(t) L} \quad \text{con} \quad \sigma_{ji} = \frac{\lambda_{ji}^3 A_{ji} g_j}{8\pi^{3/2} v g_i} \quad (2)$$

siendo g_{ji} ($0 \leq g_{ji} \leq 1$) el factor de transparencia del plasma, λ_{ji} la longitud de onda, R_{ji} la respuesta instrumental y σ_{ji} la sección eficaz de absorción correspondientes a la transición $2p_j \rightarrow 1s_i$, así como, g_i y g_j

son las degeneraciones de los niveles superior e inferior, v la velocidad media de los átomos a la temperatura del gas, L la longitud del plasma y Ω el ángulo sólido subtendido por el detector.

Al iluminar la descarga de luminiscencia negativa con un pulso láser sintonizado con la transición $1s_5 \rightarrow 2p_2$ se incrementa la población del nivel $2p_2$ (3P_1 en notación LS) el cual mayormente decae por fluorescencia a los niveles $1s_i$ (Tabla I). Este proceso redistribuye la población bombeada produciendo una ligera recuperación de la población del nivel bombeado $1s_5$ y un incremento de las de los niveles $1s_2$, $1s_3$ y $1s_4$. Como se puede deducir de la ecuación (2), en este caso todos los factores de transparencia (g_{ji}) entre las dos primeras configuraciones alteran sus valores. Más precisamente, las transiciones que involucran el nivel bombeado $1s_5$ ven aumentados sus factores de transparencia mientras que los que involucran los otros $1s_i$ disminuyen.

Tabla I: Longitud de onda y probabilidad de transición de $2p_2$ (3P_1) (con degeneración $g_2=3$) a $1s_i$ con degeneración g_i

	λ_{ji} (nm)	A_{ji} (1/s)	g_i
$1s_2$ (1P_1)	659,89	$2,32 \cdot 10^7$	3
$1s_3$ (3P_0)	616,36	$1,46 \cdot 10^7$	1
$1s_4$ (3P_1)	603,00	$0,56 \cdot 10^7$	3
$1s_5$ (3P_2)	588,19	$1,15 \cdot 10^7$	5

El tratamiento adecuado de las medidas de fluorescencia correspondientes a transiciones $1s_i \rightarrow 2p_j$ permite la determinación de las evoluciones temporales de los niveles de la primera configuración excitada del Neón^[3]. Teniendo en cuenta la ecuación (2) y despejando de la ecuación (1) la población del nivel $2p_j$ para las transiciones $1s_i \rightarrow 2p_j$ y $1s_m \rightarrow 2p_j$ es posible establecer la igualdad:

$$P_j(t) = \frac{0,86 + \sigma_{ji} S_i(t) L}{0,86 A_{ji}} I_{ji}(t) = \frac{0,86 + \sigma_{jm} S_m(t) L}{0,86 A_{jm}} I_{jm}(t) \quad (3)$$

Las densidades de población $S_i(t)$ ($2 \leq i \leq 5$) son cuatro incógnitas cuyos valores pueden ser determinados, en cada instante, mediante la resolución de un sistema de cuatro expresiones similares a la última igualdad de la ecuación (3). Por este motivo es necesario la medida de las intensidades de fluorescencia de cuatro pares de transiciones $2p_j \rightarrow 1s_i$ y $2p_j \rightarrow 1s_m$ distintos en los cuales aparezcan involucrados los cuatro niveles $1s_i$.

Si se incluye el nivel bombeado en dicho sistema de ecuaciones se debe tener en cuenta que la población del nivel excitado $2p_2$ puede incrementarse a valores comparables o superiores a algunos de los $1s_i$. En estas circunstancias el fenómeno de emisión estimulada tiene que ser incluido en la expresión (2) de la siguiente manera:

$$g_{2i}(t) = \frac{0,86}{0,86 + \kappa_{2i} \left(\frac{g_{2i}}{g_i} S_i(t) - P_2(t) \right)} \quad (4)$$

donde

$$\kappa_{2i} = \frac{\lambda_{2i}^3 A_{2i}}{8\pi^{3/2} v} L$$

Esta modificación predice que transiciones que parten del nivel $2p_2$ a algunos de los niveles $1s_i$ pueden tener coeficiente g_{2i} con valores superiores a la unidad en los instantes en que la población de $2p_2$ supere a $(g_2 S_i(t) / g_i)$.

Para ejemplificar esta situación y considerando que las densidades de población estacionaria medidas en la descarga a 5 Torr de presión y 5 mA de corriente son $S_2 = 2,5 \cdot 10^{11} \text{ cm}^{-3}$, $S_3 = 5 \cdot 10^{11} \text{ cm}^{-3}$, $S_4 = 18 \cdot 10^{11} \text{ cm}^{-3}$ y $S_5 = 44 \cdot 10^{11} \text{ cm}^{-3}$ [3,4], al saturar la transición, puede transferirse un máximo de $3/8 S_5 = 16,5 \cdot 10^{11} \text{ cm}^{-3}$. En consecuencia, para ciertas intensidades de irradiación, la población del nivel $2p_2$ puede superar el factor $(3/3 S_2 = 2,5 \cdot 10^{11} \text{ cm}^{-3})$ y $(3/1 S_3 = 15 \cdot 10^{11} \text{ cm}^{-3})$ asociados a los niveles $1s_2$ y $1s_3$ pero no el de $1s_4$ ($3/3 S_4 = 18 \cdot 10^{11} \text{ cm}^{-3}$).

En general, teniendo en cuenta las ecuaciones (1) y (4), debe remarcarse que en los primeros instantes la intensidad de fluorescencia de transiciones que parten del nivel bombeado podría aumentar tanto por el incremento de población como por el aumento de la transparencia del medio. Así mismo, fluorescencias originadas en el nivel $2p_2$ podrían no seguir la evolución temporal de su población sino que la definida por el producto $g_{2i}(t) P_2(t)$.

En particular, en la figura 2 se muestra que, para distintas intensidades del pulso de excitación, la evolución temporal de las intensidades de fluorescencia para la transición $2p_2 \rightarrow 1s_4$ mayormente no varían. Utilizando la ecuación (1) puede concluirse que el producto de $g_{24}(t)$ con $P_2(t)$ permanece constante en todo instante independientemente de la intensidad del bombeo. Teniendo en cuenta que la probabilidad de transición de $2p_2$ a $1s_4$ respecto de la probabilidad total es 0.1 puede suponerse que la variación relativa a la población estacionaria de $1s_4$ es despreciable. Por lo tanto, en las condiciones de irradiación de esta experiencia en las cuales el máximo de población de $2p_2$ es menor que el valor estacionario de $1s_4$, el factor de transparencia $g_{24}(t)$ permanece prácticamente constante ($g_{24}(t) = g_{24}^0 = 0,80$). En consecuencia la evolución temporal $P_2(t)$ no cambia para las distintas intensidades de bombeo.

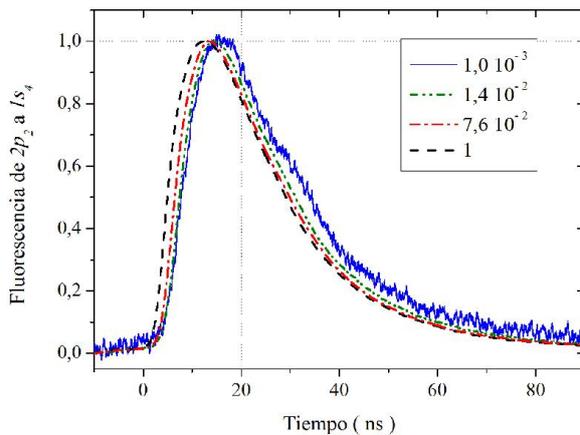


Figura 2. Fluorescencias normalizadas de la transición $2p_2 \rightarrow 1s_4$ obtenidas con distintas atenuaciones del pulso luminoso.

Por otro lado, en las figuras 3 y 4 puede apreciarse la clara reducción del tiempo de fluorescencia para las transiciones $2p_2 \rightarrow 1s_2$ y $2p_2 \rightarrow 1s_3$. Dado que, como fuera discutido, el tiempo de vida del nivel $2p_2$ permanece inalterable para las distintas intensidades de irradiación, puede establecerse de la ecuación (1) que los factores de transparencia $g_{22}(t)$ y $g_{23}(t)$ son los responsables de las diferencias temporales de las señales registradas.

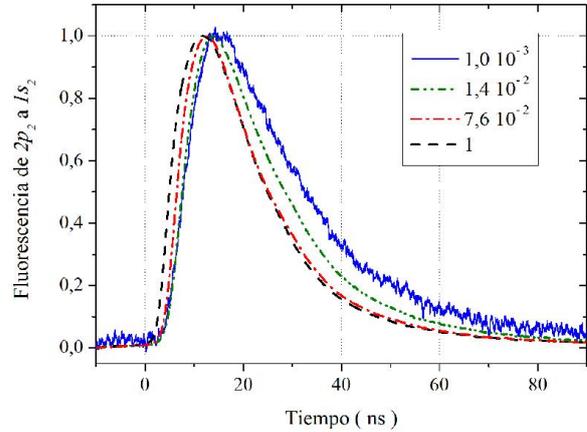


Figura 3. Fluorescencias normalizadas de la transición $2p_2 \rightarrow 1s_2$ obtenidas con distintas atenuaciones del pulso luminoso.

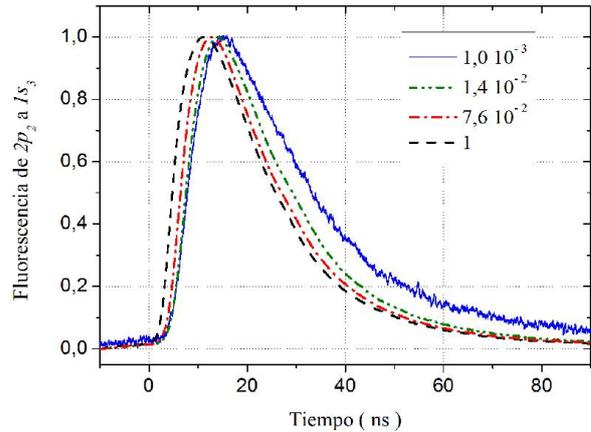


Figura 4. Fluorescencias normalizadas de la transición $2p_2 \rightarrow 1s_3$ obtenidas con distintas atenuaciones del pulso luminoso.

Utilizando las medidas de evolución temporal de emisión asociadas a las transiciones de $2p_2$ a $1s_2$ y $1s_4$ (I_{22} y I_{24}) se puede obtener la variación del factor de transparencia g_{22} según la siguiente expresión:

$$g_{22}(t) = \frac{I_{22}(t) A_{24} R_{24}}{I_{24}(t) A_{22} R_{22}} g_{24}(t) \quad (5)$$

Teniendo en cuenta que la variación temporal de g_{24} es despreciable se obtiene la evolución de $g_{22}(t)$ mostrada en la figura 5. En la misma se observa que en los primeros instantes el factor de transparencia g_{22} supera el valor

estacionario $g_{22}^0 = 0,82$, e incluso el de la unidad, a medida que las intensidades de irradiación aumentan. Esto es debido a que el aumento de la densidad de población $P_2(t)$ se hace comparable o supera a $(g_2 S_2(t) / g_2)$ lo cual provoca el consiguiente incremento de la intensidad de la fluorescencia estimulada.

También se puede apreciar en la figura 5 que, en el caso de altas intensidades de irradiación y después del retorno a su valor estacionario de la población del nivel $2p_2$, el medio se hace más opaco como consecuencia del importante incremento en la población de Is_2 .

Esta variación temporal en el factor de transparencia para altas intensidades de irradiación afecta la amplitud y la evolución temporal de las fluorescencias medidas de acuerdo a la ecuación (1) y debe ser considerada para una correcta determinación de la densidad $P_2(t)$.

En consecuencia, si en el establecimiento del sistema de ecuaciones para la determinación de $S_i(t)$ se utiliza el nivel bombeado $2p_2$ debería modificarse la ecuación (3) para las transiciones originadas en este nivel de la siguiente forma:

$$P_2(t) = \frac{0,86 + \kappa_{2i} \left(\frac{g_2 S_i(t) - P_2(t)}{g_i} \right)}{0,86 A_{2i} \Omega R_{2i}} I_{2i}(t) = \quad (6)$$

$$= \frac{0,86 + \kappa_{2m} \left(\frac{g_2 S_m(t) - P_2(t)}{g_m} \right)}{0,86 A_{2m} \Omega R_{2m}} I_{2m}(t)$$

donde ahora, además de las densidades de población $S_i(t)$ ($2 \leq i \leq 5$) aparece la incógnita $P_2(t)$. Por lo tanto, para instantes en los que la población de $2p_2$ es comparable a la de $S_i(t)$, la consideración de ecuación (6) en el sistema de ecuaciones mencionado dificulta su resolución respecto del caso de excitación con suficientemente baja intensidad de irradiación.

Conclusiones

Se ha puesto de relevancia la importancia de considerar el atrapamiento de radiación entre la primera y segunda configuración electrónica excitada en descargas de luminiscencia negativa en cátodo hueco en Neón. Este efecto es debido a que dicho átomo se caracteriza por una gran sección eficaz de absorción de radiación entre los

niveles mencionados y que además dicha descarga se caracteriza por una elevada densidad de población de los niveles Is_i .

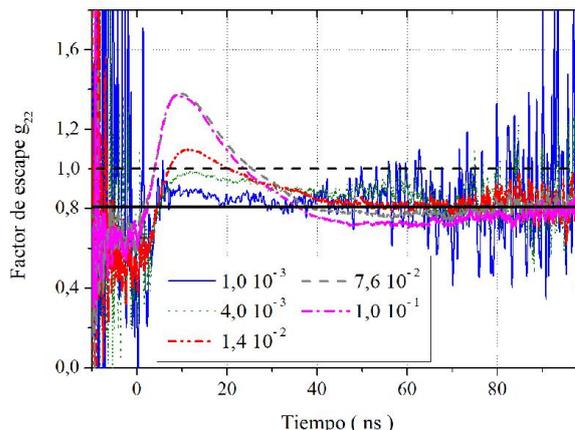


Figura 5. Factor de transparencia de la radiación correspondiente $2p_2 \rightarrow Is_2$ calculada con distintas atenuaciones del pulso luminoso. Línea horizontal gruesa: valor estacionario ($g_{22}^0 = 0,82$).

Se puso en evidencia que también es necesario tener en cuenta el proceso de emisión estimulada en la expresión del factor de transparencia para las transiciones que involucren el nivel excitado en el caso de irradiación con pulsos de alta intensidad.

Se ha demostrado que la variación temporal en el factor de transparencia para altas intensidades de irradiación afecta tanto la amplitud y como la evolución temporal de las fluorescencias medidas y debe ser considerada para una correcta determinación de las evoluciones de las densidades del nivel excitado.

Se estableció un criterio de selección de transiciones que facilita la resolución del sistema de ecuaciones utilizado para obtener las densidades de población $S_i(t)$.

Referencias:

- 1 - T.Holstein. Phys.Rev. **83** (1951) 1159.
- 2 - T.Fujimoto, C.Goto and K.Fukuda. Phys.Scr **26** (1982) 443.
- 3 - V.D'accuso, F.A.Manzano. Anales AFA **19** (2007) 51.
- 4 - E.F. Zalewski, R.A. Keller, R. Englemen Jr. J. Chem. Phys **70** (1979) 1015.