

INTERCAMBIO DE POBLACIÓN ENTRE LOS NIVELES $2p_j$ POR COLISIONES CON ÁTOMOS Y ELECTRONES

V. D'Accurso, F. A. Manzano

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, Pcia. de Buenos Aires
 e-mail: fmunzano@citefa.gov.ar, vdacurso@citefa.gov.ar

En una descarga de luminiscencia negativa se estudian las variaciones de las tasas de intercambio de población entre los niveles $2p_j$ del Neón al variar la densidad de electrones y átomos que las provocan. Estas variaciones son detectadas por medio del registro de las intensidades de las fluorescencias inducidas por láser en las transiciones $2p_j \rightarrow 1s_i$ ($j \neq 4$) al excitar la transición $1s_5 \rightarrow 2p_4$ y modificar la corriente de sostenimiento de la descarga y la presión de Neón en el interior de una lámpara de cátodo hueco. Se determinan los valores del coeficiente de intercambio de población por colisiones desde el nivel $2p_4$ a los niveles $2p_2, 2p_3, 2p_5$ y $2p_7$.

We study the dependence of the $2p_j$ population collisional exchange rates on the atom or electron densities in a Neon glow discharge. Tuning the laser pulses frequency on the $1s_5 \rightarrow 2p_4$ transition, variations in the laser induced fluorescence intensities from $2p_j \rightarrow 1s_i$ ($j \neq 4$) transitions are detected as function of the sustaining discharge current and the pressure of a hollow cathode lamp. Values for the $2p_4$ population collisional exchange to the $2p_2, 2p_3, 2p_5$ y $2p_7$ levels are deduced.

Introducción

Para poder modelar la dinámica de una descarga de luminiscencia negativa en gases atómicos es necesario conocer los diferentes coeficientes que caracterizan los distintos procesos colisionales que tienen lugar en el plasma y que a su vez definen la magnitud que alcanzan las poblaciones de los niveles atómicos y las densidades de cargas. Si bien muchos de estos coeficientes son bien conocidos, los que describen el intercambio de población entre niveles excitados por colisiones con átomos o electrones están pobremente determinados.

En este trabajo se estudia el proceso de intercambio de población entre los niveles $2p_j$ del Neón ($1 \leq j \leq 10$, notación de Paschen) y se analiza la contribución de cada especie colisionante en una descarga producida en una lámpara de cátodo hueco. Con esta finalidad y por medio de la detección de fluorescencias inducidas desde la segunda configuración ($2p_j$) al excitar una transición $1s_d \rightarrow 2p_b$ con pulsos láser, se establece la dependencia de las tasas de intercambio de población con la presión y la corriente de sostenimiento de la descarga.

Teoría

En un modelo detallado que describa una descarga gaseosa⁽¹⁾, las ecuaciones de balance para las poblaciones de los 9 niveles $2p_j$ vecinos al bombeado $2p_b$ incluyen términos de aporte (Apo) y de pérdida (Per) así como los de intercambio de población entre ellos. La estructura fundamental de la ecuación de balance en este caso resulta ser la siguiente:

$$dP_j/dt = \text{Apo} - \text{Per} - \text{Mez} - (R_a^{jb} N_a + R_e^{jb} N_e) P_j + (R_a^{aj} N_a + R_e^{aj} N_e) P_b \quad (1)$$

donde el término de intercambio de población ha sido separado en contribuciones desde o hacia niveles distintos del nivel bombeado (Mez) y las relacionadas con el nivel bombeado. R_a^{xy} y R_e^{xy} son las tasas de intercambio de población desde el nivel $2p_x$ al $2p_y$ por átomos y

electrones, N_a y N_e son las densidades de átomos y electrones y P_x es la población del nivel $2p_x$.

Cuando se irradia con un láser pulsado sintonizado a una transición $1s_d \rightarrow 2p_b$ de duración menor que el tiempo de vida media del nivel $2p_b$, su población (P_b) se eleva respecto de la estacionaria al orden de magnitud de la población del nivel $1s_d$ la cual es, para descargas en Neón, aproximadamente 100 veces más grande.

La mayor parte del incremento de población provocado por la irradiación láser en el nivel $2p_b$ decae por fluorescencia a los niveles $1s_i$ y el resto es redistribuido por colisiones con átomos y electrones a los niveles vecinos $2p_j$ la cual puede ser calculada utilizando la ecuación (1).

En el estado estacionario, todos los términos del miembro derecho de la ecuación (1) se anulan entre sí. Cuando se considera el efecto producido por la irradiación láser, el término que describe la redistribución del nivel bombeado se ve fuertemente afectado dejando los otros términos prácticamente inalterados.

Para poder comparar la importancia del término Mez en la ecuación (1) es útil tener en cuenta su composición:

$$\text{Mez} = \sum_{\substack{k \neq j \\ k \neq b}} (R_a^{kj} N_a + R_e^{kj} N_e) P_k - \sum_{\substack{k \neq j \\ k \neq b}} (R_a^{jk} N_a + R_e^{jk} N_e) P_j \quad (2)$$

Como $R^{kj} \approx R^{jk}$ tanto para colisiones con átomos como con electrones y las poblaciones P_j ($j \neq b$) en tiempos del orden del tiempo de vida media de los niveles (≈ 40 ns) se mantienen en el mismo orden de magnitud que las no perturbadas, entonces Mez puede ser despreciado frente al término que contiene la población bombeada. Un razonamiento similar puede ser aplicado al cuarto término.

Por otro lado el término de aporte al nivel $2p_j$ (Apo) tiene en cuenta la excitación desde el nivel fundamental y desde los 4 niveles $1s_i$ de la primera configuración

excitada y el de pérdida considera la fluorescencia e ionización (Per). En estado estacionario ambos términos tienden a cancelarse. La irradiación de la descarga con un pulso láser produce un cambio pequeño en la población total de la primera configuración y la contribución de la suma de ambos puede ser despreciada frente a la que contiene la población bombeada.

En consecuencia, para tiempos del orden del tiempo de vida media del nivel, la ecuación (1) puede aproximarse por:

$$dP_j/dt \cong (R_a^{bj} N_a + R_e^{bj} N_e) P_b(t) \quad (3)$$

Por otro lado la intensidad de fluorescencia de la transición $2p_i \rightarrow 1s_i$ detectada es:

$$I_{ji}(t) = R(\lambda_{ji}) g_{ji}(t) A_{ji} \Omega P_j(t) \quad (4)$$

donde $R(\lambda_{ji})$ es la respuesta instrumental, A_{ji} es el coeficiente de Einstein y $g_{ji}(t)$ es la transparencia del medio para la longitud de onda λ_{ji} y Ω el ángulo sólido subtendido por el volumen bajo estudio al detector. Refiriendo la intensidad de fluorescencia inducida a la estacionaria para eliminar la función instrumental, de la ecuación (4) se obtiene:

$$P_j(t) / P_j^o = I_{ji}(t) g_{ji}^o / (I_{ji}^o g_{ji}(t)) \quad (5)$$

donde el supraíndice (o) denota los valores de estado estacionario.

Teniendo en cuenta la ecuación (3) integrada y la ecuación (5), dentro de las aproximaciones consideradas, resulta:

$$R_a^{bj} N_a + R_e^{bj} N_e \cong \frac{P_j^o (I_{ji}^{max} (g_{ji}^o / g_{ji}^{max}) - I_{ji}^o) / I_{ji}^o}{P_b^o \int_b^{max} I_{bq}(t) (g_{bq}^o / g_{bq}(t)) dt / I_{bq}^o} \quad (6)$$

donde el supraíndice *max* denota los valores máximos.

Si se eligen decaimientos que no involucren el nivel $1s_d$ despojado por el pulso láser, la variación de transparencia del plasma, la cual depende de la población de los niveles $1s_i$, es despreciable y por ende se puede considerar que $g_{ji}^o / g_{ji}^{max} \cong 1$ y $g_{ji}^o / g_{ji}(t) \cong 1$ facilitando la obtención experimental de los coeficientes de intercambio de población

Por otro lado, si suponemos que el cociente de población P_j^o / P_b^o varía ligeramente, en el rango de cambios de presión y corriente de sostenimiento de la descarga realizados en este trabajo, se obtiene de la ecuación (6):

$$R_a^{bj} N_a + R_e^{bj} N_e \cong \alpha_{jb} \frac{(I_{ji}^{max} - I_{ji}^o) / I_{ji}^o}{\int_b^{max} I_{bq}(t) dt / I_{bq}^o} \quad i, q \neq d \quad (7)$$

donde $\alpha_{jb} = P_j^o / P_b^o \cong cte$.

En consecuencia, de la medición de las variaciones de intensidad de fluorescencias de cada nivel $2p_i$ y del incremento de presencia del nivel bombeado $2p_b$ puede deducirse el valor de las tasas de intercambio de población por impacto atómico y electrónico.

Experiencia

Con pulsos de un láser de colorantes ($\tau_{ATAM} = 6$ ns) sintonizado en resonancia con la transición $1s_5 \rightarrow 2p_4$ se irradia el plasma generado por una descarga de luminiscencia negativa en una lámpara de cátodo hueco en Neón transfiriéndose parte de la población del nivel $1s_5$ al nivel $2p_4$.

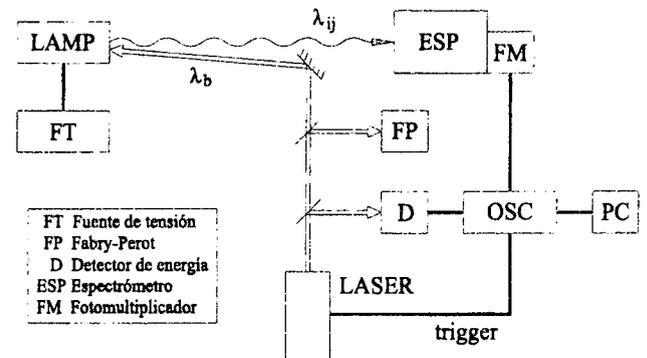


Fig. 1. Arreglo experimental para medición de fluorescencia inducida.

Las intensidades de fluorescencia inducida desde los niveles $2p_m$ fueron detectadas por medio de un fotomultiplicador ($\tau_{repara} < 1$ ns) a través de un monocromador y, luego de ser promediadas en un osciloscopio digital Tektronix TDS540, transferidas a una computadora. La estabilidad en intensidad y frecuencia de la radiación de bombeo fueron monitoreadas permanentemente por medio de un detector piroeléctrico y un Fabry-Perot. El arreglo experimental utilizado para la medida es mostrado en la Fig. 1.

Con la finalidad de mejorar la relación señal-ruido se restó de la señal obtenida la registrada con la emisión láser fuera de resonancia la cual contiene ruidos electrónicos repetitivos proveniente de la fuente del láser y la fluorescencia estacionaria de la transición elegida.

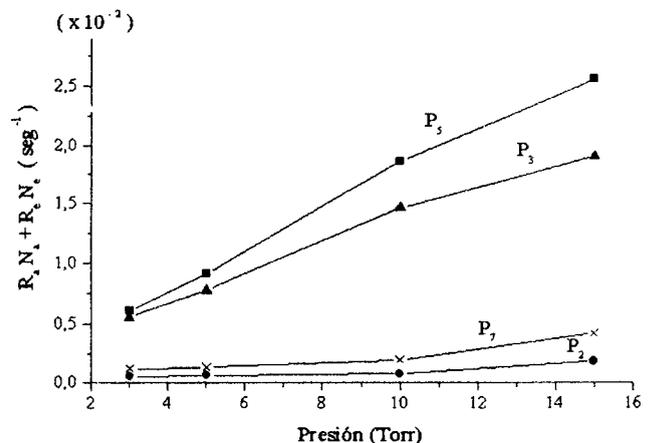


Fig. 2. Tasas de intercambio de población medida vs presión

Los resultados de las mediciones de las variaciones de intensidad de fluorescencia desde los niveles $2p_2$, $2p_3$, $2p_5$ y $2p_7$ y el incremento de fluorescencia desde el nivel bombeado $2p_4$ en función de la presión y la corriente de la

descarga aplicando la ecuación (7) se muestran en las Fig.2 y Fig.3 observándose la dependencia lineal esperada. Las curvas obtenidas para los otros niveles muestran un comportamiento similar y una pendiente menor que la del nivel $2p_2$ no incluyéndose por simplicidad.

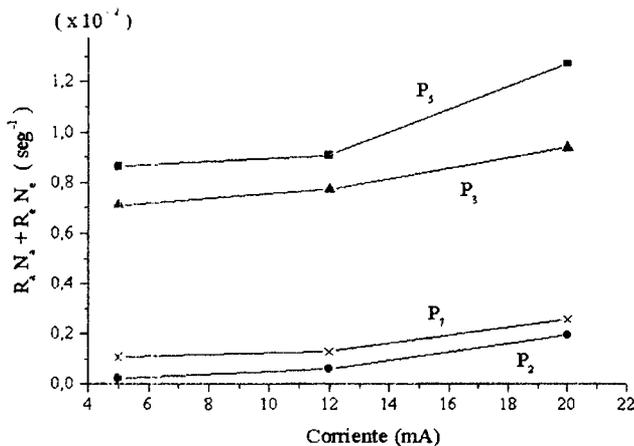


Fig.3. Tasas de intercambio de población medida vs corriente

En las figuras 2 y 3 se pueden observar que los átomos en los niveles $2p_3$ y $2p_5$ separados de $2p_4$ en 0.008 eV y 0.010 eV respectivamente son los que más pueden intercambiar población con el nivel $2p_4$ dado que presentan mayor pendiente, mientras que los otros niveles lo pueden hacer en menor medida. Entre estos se encuentran los niveles $2p_2$ y $2p_7$ separados de $2p_4$ en 0.023 eV y 0.091 eV respectivamente. Se puede observar que a pesar del mayor salto de energía, la población del nivel $2p_7$ se incrementa más que la del nivel $2p_2$. Estos comportamientos se extienden a lo largo del rango de presión y corriente presentado en este trabajo y sugieren que el cálculo de los coeficientes de intercambio basado en un modelo de impulso semiclásico no tendría validez.

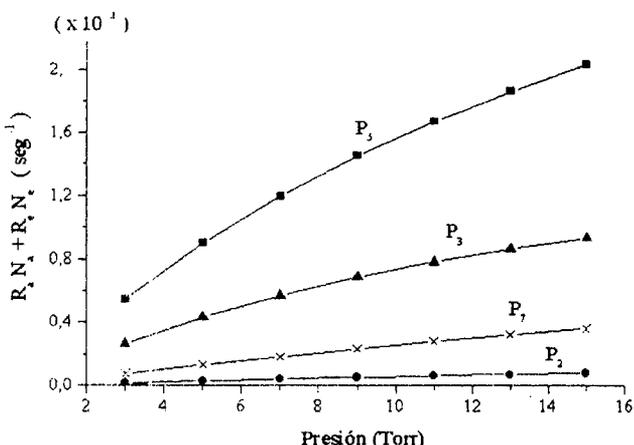


Fig.4. Tasas de intercambio de población teórica vs presión.

En las figuras 4 y 5 se muestran los resultados obtenidos teóricamente en base a un modelo de ecuaciones de balance que describe el comportamiento de este tipo de descarga⁽¹⁾ considerando que el intercambio de población es debido solamente a impacto electrónico y atómico respectivamente. La Fig. 5 muestra una depen-

dencia con la corriente mucho mayor a la observada experimentalmente mientras que la Fig. 4 muestra una dependencia con la presión muy próxima a la experimental. Así mismo en la Fig.3 se observa que para N_e tendiendo a cero $R_a N_a + R_e N_e$ tiende a un valor constante e importante (tasa de intercambio por átomos) mientras que en la Fig.2, cuando N_a tiende a cero, el valor de $R_a N_a + R_e N_e$ también tiende a cero.

La comparación de los resultados teóricos con los experimentales sugiere que el mecanismo preponderante para el intercambio de población entre los niveles $2p_j$ es debido a colisiones con átomos en estado fundamental.

Los valores obtenidos para el coeficiente de intercambio de población sin tener en cuenta el atrapamiento de radiación para los niveles $2p_2$, $2p_3$, $2p_5$ y $2p_7$ son $7,6 \cdot 10^{-5}$ cm 3 /seg $^{-1}$; $1,2 \cdot 10^{-3}$ cm 3 /seg $^{-1}$; $1,7 \cdot 10^{-3}$ cm 3 /seg $^{-1}$ y $2,3 \cdot 10^{-4}$ cm 3 /seg $^{-1}$ respectivamente.

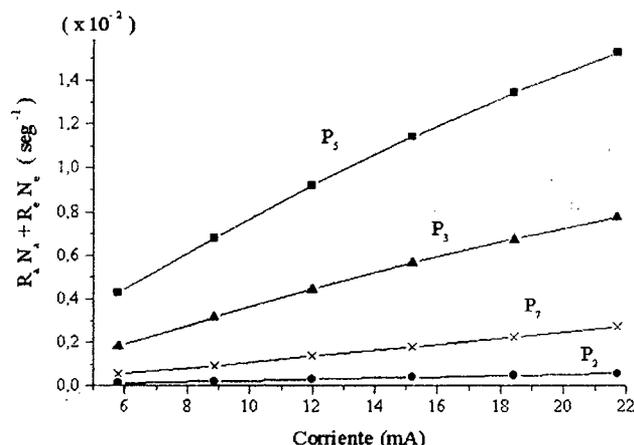


Fig.5. Tasas de intercambio de población teórica vs corriente

Una determinación más precisa de éstos valores se lograría teniendo en cuenta la siguiente discusión. Utilizando la ecuación (4), el cociente de población estacionaria del nivel $2p_j$ respecto del nivel $2p_b$ puede ser escrita en función de las intensidades de fluorescencias medidas:

$$P_j^0 / P_b^0 = I_{ji}^0 R(\lambda_{bq}) g_{bq}^0 A_{bq} / (I_{bq}^0 R(\lambda_{ji}) g_{ji}^0 A_{ji})$$

donde la transparencia del plasma (g_{xy}^0) para la fluorescencia de la transición $1s_x \rightarrow 2p_y$ depende tanto de la población del nivel $1s_y$ como de la temperatura del gas. Estas mediciones se hallan en curso de realización y serán objeto de un posterior análisis.

Conclusiones

Se ha logrado realizar determinaciones del orden de magnitud de los coeficientes de intercambio de población desde el nivel $2p_4$ y los niveles $2p_2$, $2p_3$, $2p_5$ y $2p_7$. Las primeras mediciones realizadas indican la predominancia de los átomos en el estado fundamental como la especie que provoca el intercambio de población.

Asimismo la magnitud del intercambio de población no depende en forma monótona de la diferencia de energía entre el nivel bombeado y los niveles vecinos.

Referencias

- [1] - V. B. Slezak, V. D'Accurso and F. A. Manzano, J.Opt.Soc.Am. B, 13 (1996) 2701.