

DETERMINACION DE COEFICIENTES DE INTERCAMBIO DE POBLACION ENTRE NIVELES EXCITADOS DEL NEON POR COLISIONES CON ATOMOS 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: fmanzano@citefa.gov.ar, vdacurso@citefa.gov.ar

Se presenta la determinación de los coeficientes de intercambio de población por colisiones con átomos y electrones entre el nivel $2p_4$ y los niveles $2p_2$, $2p_3$, $2p_5$ y $2p_7$ de la segunda configuración excitada del átomo de Neón.

Los valores se calculan a partir del análisis de las señales de fluorescencia inducida desde los distintos niveles, obtenidas al irradiar el plasma generado por una lámpara de cátodo hueco con pulsos láser a una frecuencia resonante con la transición $1s_5 - 2p_4$, en función de la presión y de la corriente de sostenimiento de la descarga de luminiscencia negativa. En dichos cálculos se evaluaron cuidadosamente diversos mecanismos de pérdida ó ganancia de población que dependen de los niveles estudiados.

Se concluye que el mecanismo preponderante para el intercambio son las colisiones con átomos en el estado fundamental cuyos coeficientes superan en un orden de magnitud los de intercambio por colisiones con electrones en el rango de presiones y corrientes utilizado.

Population collisional exchange rates by atom or electron collisions from the $2p_4$ to the $2p_2$, $2p_3$, $2p_5$ and $2p_7$ levels of Neon are determined. The values are obtained from the analysis of laser induced fluorescence signals recorded when a hollow cathode lamp is irradiated by laser pulses on the $1s_5 \rightarrow 2p_4$ transition. The dependence of the LIF signals on the sustaining discharge current and the pressure of a hollow cathode lamp is studied. Contributions to the gain or loss of the population densities by several processes are carefully evaluated and discussed. The $2p_4$ collisions with the ground state atoms are the main mechanisms of the $2p$ population exchange.

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 ó electrones están pobremente determinados.

En un trabajo realizado anteriormente ^[1], por medio de la comparación de resultados teórico-experimentales, llegamos a la conclusión que el proceso de intercambio de población entre niveles excitados es gobernado primordialmente por colisiones con átomos en estado fundamental. Sin embargo, en estas experiencias sólo se era sensible al intercambio producido por colisiones con ambas especies determinándose el orden de magnitud del coeficiente de intercambio global.

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.

A fin de mejorar la precisión de las determinaciones alcanzadas en el trabajo anterior, se realizaron mayor número de mediciones eligiéndose condiciones

experimentales particulares que favorecieran la predominancia de uno de los colisionantes y se desarrolló un método de análisis de datos diferente.

Teoría

Las ecuaciones de balance que describen las poblaciones de cualquiera de los 9 niveles $2p_j$ vecinos al bombeado $2p_b$ en un plasma generado por una descarga de cátodo hueco en Neón deben incluir términos de aporte por excitación electrónica desde el nivel fundamental y la 1^{ra} configuración excitada (Apo), de pérdida (Per) por ionización y fundamentalmente por decaimientos fluorescentes. La estructura fundamental de la ecuación de balance se muestra en la ecuación (1), donde el término de intercambio de población entre el nivel $2p_j$ y todos los demás niveles, ha sido separado en contribuciones desde o hacia niveles distintos al nivel bombeado (Mez) y los relacionados con el nivel bombeado. Además, ha sido puesto en evidencia el término de pérdidas por fluorescencia.

$$\frac{dP_j}{dt} = Apo - Per - \sum_{2 \leq i \leq 5} A_{ji} g_{ji} P_j + Mez - (Ra_{jb} N_a + Re_{jb} N_e) P_j + (Ra_{bj} N_a + Re_{bj} N_e) P_b \quad (1)$$

En dicha ecuación Ra_{xy} y Re_{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, P_x es la población del nivel $2p_x$, A_{ji} es el coeficiente de Einstein y g_{ji} es la transparencia del

medio para la transición $2p_j \rightarrow 1s_i$ función a su vez de la población $1s_i$.

Si $P_j(t)$ se escribe como $P_j^0 + \Delta P_j(t)$ con P_j^0 la población de equilibrio obedeciendo $dP_j^0/dt = 0$, la expresión (1) se transforma en:

$$\frac{d\Delta P_j}{dt} = \Delta(Apo) - \Delta(Per) - \sum_{2 \leq i \leq 5} A_{ji} g_{ji} \Delta P_j + \Delta(Mez) - (Ra_{jh} N_a + Re_{jh} N_e) \Delta P_j + (Ra_{bj} N_a + Re_{bj} N_e) \Delta P_b \quad (2)$$

donde $\Delta(Apo)$ tiene en cuenta la variación de los niveles $1s_i$; y $\Delta(Per)$ las variaciones del P_j .

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 1000 veces más grande. Por lo tanto, el término que describe la redistribución del nivel bombeado se incrementa fuertemente.

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).

Resolviendo un sistema de ecuaciones similar a la ec.(1) desarrollado para estudiar el efecto optogalvánico^[2] se evaluó la influencia del primero y segundo término de la ec.(1) frente a los demás al variar sustancialmente la población P_j suponiendo que los coeficientes de intercambio variaban entre 10^4 a 10^6 seg^{-1} . Para todas las transiciones estudiadas y en todos los casos se encontró, como se muestra en la Fig.1 para un caso desfavorable de un nivel relativamente alejado del bombeado, que la contribución de Apo, Per y Mez para tiempos del orden de los de decaimiento de $2p_j$ era despreciable.

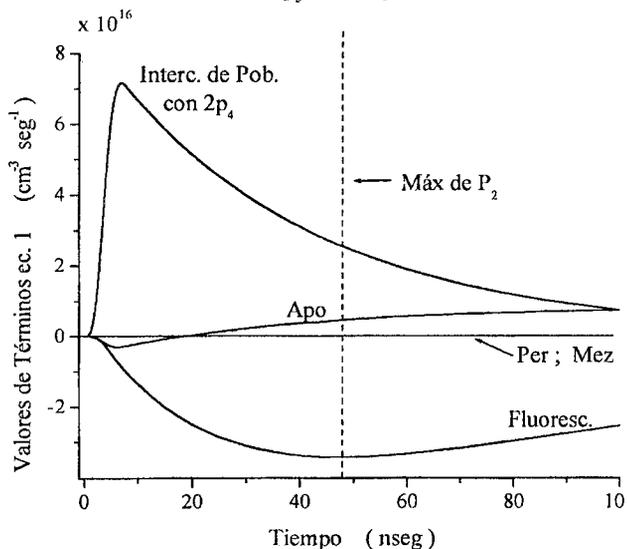


Figura 1. Evaluación de las contribuciones de cada término de la ecuación (1).

En consecuencia, para tiempos del orden del tiempo de vida media del nivel y aplicando el principio de

balance detallado entre R_{jb} y R_{bj} , la ecuación (1) puede aproximarse por:

$$\frac{d\Delta P_j}{dt} = - \sum_{2 \leq i \leq 5} A_{ji} g_{ji} \Delta P_j + Ra_{bj} N_a \left(\Delta P_b - \left(\frac{2j_b + 1}{2j_j + 1} \right) \exp\left(\frac{E_j - E_b}{k T_a} \right) \Delta P_j \right) + Re_{bj} N_e \left(\Delta P_b - \left(\frac{2j_b + 1}{2j_j + 1} \right) \exp\left(\frac{E_j - E_b}{k T_e} \right) \Delta P_j \right) \quad (3)$$

donde $(2j_b + 1)$ y $(2j_j + 1)$ denotan las degeneraciones de los niveles.

Cuando $\Delta P_j = \Delta P_{j\text{máx}}$ es máximo puede despejarse:

$$Ra_{bj} N_a + Re_{bj} N_e \left(\frac{\alpha}{\beta} \right) = \left(\frac{1}{\beta} \right) \sum_{2 \leq i \leq 5} A_{ji} g_{ji}^* \quad (4)$$

donde

$$\alpha = \left(\frac{\Delta P_b^*}{\Delta P_{j\text{máx}}} - \left(\frac{2j_b + 1}{2j_j + 1} \right) \exp\left(\frac{E_j - E_b}{k T_e} \right) \right)$$

$$\beta = \left(\frac{\Delta P_b^*}{\Delta P_{j\text{máx}}} - \left(\frac{2j_b + 1}{2j_j + 1} \right) \exp\left(\frac{E_j - E_b}{k T_a} \right) \right)$$

con $\Delta P_b^* = \Delta P_b$ y $g_{ji}^* = g_{ji}$ evaluados en el instante en que ΔP_j alcanza su máximo valor. N_e se considera constante ya que las señales optogalvánicas producidas son del orden del 0,1%.

Teniendo en cuenta que la intensidad de fluorescencia de la transición $2p_j \rightarrow 1s_i$ detectada es:

$$I_j = R(\lambda) g(\lambda) A(\lambda) \Omega P_j \quad (5)$$

donde $R(\lambda)$ es la respuesta instrumental, $A(\lambda)$ es el coeficiente de Einstein y Ω el ángulo sólido subtendido por el volumen bajo estudio al detector entonces puede expresarse:

$$\frac{\Delta P_b^*}{\Delta P_{j\text{máx}}} = \frac{R(\lambda_j) g_{\text{máx}}(\lambda_j) A(\lambda_j) \left(\frac{\Delta I_b^*}{\Delta I_{j\text{máx}}} \right)}{R(\lambda_b) g^*(\lambda_b) A(\lambda_b)} \quad (6)$$

a condición de realizar las medidas a Ω constante.

En consecuencia, de la medición de las variaciones de intensidad de fluorescencias de cada nivel $2p_j$ y del incremento de fluorescencia del nivel bombeado $2p_b$ puede deducirse, a partir de la ecuación (4), sólo el valor global de las tasas de intercambio de población por impacto atómico y electrónico.

Experiencia

Con pulsos de un láser de colorantes ($\tau_{\text{ATAM}} = 6 \text{ ns}$) sintonizado en resonancia con la transición $1s_5 \rightarrow 2p_4$ se irradió 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 $2p_4$. La lámpara construida en nuestro laboratorio

posee un cátodo en forma de cilindro hueco, dos ánodos en forma de anillo y posibilita el llenado a distintas presiones de Neón de alta pureza^[3].

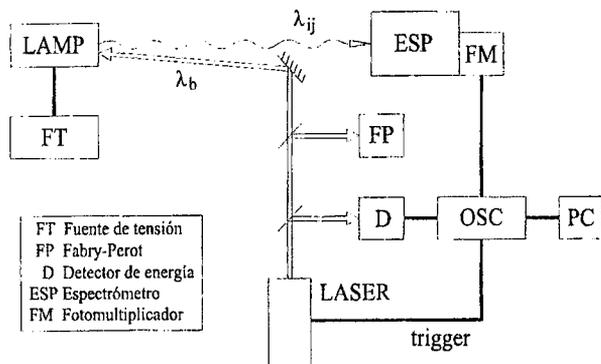


Figura 2. Arreglo experimental para medición de fluorescencia inducida.

Las intensidades de fluorescencia inducida desde los niveles $2p_m$ fueron detectadas por medio de un fotomultiplicador ($\tau_{\text{reparada}} < 1 \text{ ns}$) 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.2.

Para 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 provenientes de la fuente del láser y la fluorescencia estacionaria de la transición elegida.

Análisis datos

Con la finalidad de determinar los coeficientes de intercambio de población Ra_{bj} y Re_{bj} se realizaron medidas de fluorescencia para distintas presiones de Neón y distintas corrientes de sostenimiento de la descarga. Teniendo en cuenta que:

$$\begin{aligned} N_a &= 9.65 \cdot 10^{18} (\text{K Torr}^{-1} \text{cm}^{-3}) \text{Pre} / T_a \equiv \psi \text{Pre} \\ N_e &= i / (\pi r^2 v_d e) \equiv i / \eta \end{aligned} \quad (7)$$

donde Pre es la presión, i la corriente, r es el radio de la descarga, v_d la velocidad de arrastre y e la carga del electrón, la ecuación (4) resulta en:

$$\psi Ra_{bj} \left(\frac{\text{Pre}}{i} \right) + \left(\frac{\alpha}{\eta \beta} \right) Re_{bj} = \left(\frac{1}{i \beta} \right) \sum_{2 \leq i \leq 5} A_{ji} g_{ji} \equiv \text{RN} \quad (8)$$

La expresión (8) puede simplificarse teniendo en cuenta que para niveles con pequeña separación de energía y para las T_a y T_e típicamente encontradas en descargas de luminiscencia negativa resulta $\alpha \approx \beta$. Por otro lado hemos comprobado que para niveles con mayor separación $\Delta P_j \ll \Delta P_b$ y por lo tanto los términos con

exponenciales pueden despreciarse encontrándose nuevamente $\alpha \approx \beta$.

Adicionalmente, 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 $1s_j$, es despreciable y por ende se puede considerar que $g(\lambda)$ permanece constante facilitando la obtención experimental de los coeficientes de intercambio de población.

Graficando el término derecho de la expresión (8) en función de Pre / i se obtiene del valor de la pendiente el producto ψRa_{bj} y de la ordenada al origen el cociente Re_{bj} / η . Las figuras 3-6 muestran las medidas obtenidas para los niveles $2p_2$, $2p_3$, $2p_5$ y $2p_7$ a 24 Torr (círculos llenos) y 10 Torr (círculos huecos).

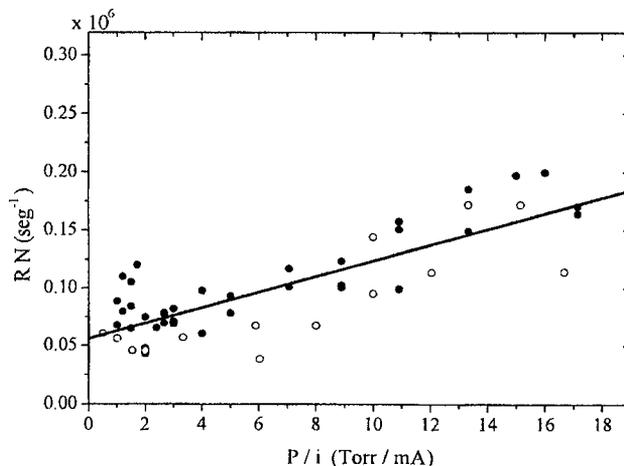


Figura 3. Coeficiente global de intercambio de población para la transición $2p_4 \rightarrow 2p_2$.

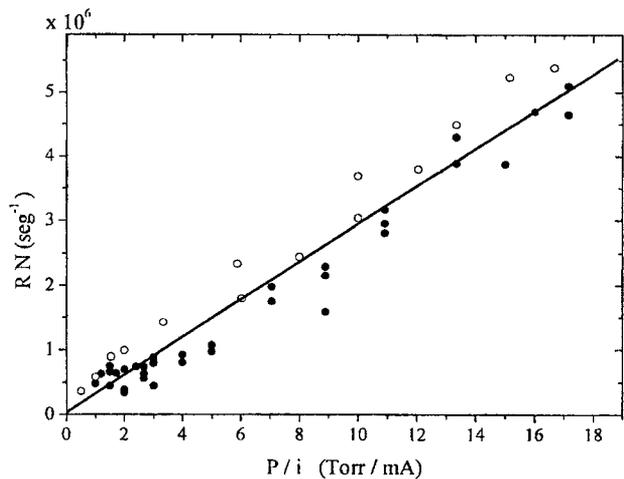


Figura 4. Coeficiente global de intercambio de población para la transición $2p_4 \rightarrow 2p_3$.

En la Tabla I se listan los valores de los coeficientes de intercambio de población de $2p_4$ a los distintos niveles estudiados por colisiones con electrones y átomos mostrando una buena concordancia entre estos últimos y valores hallados en la literatura^[4]. La mayor dispersión de datos que se aprecian en la Fig.3 es debida a la pequeña magnitud de las intensidades de las fluorescencias inducidas para la transición $2p_4 \rightarrow 2p_2$. En general, este problema se manifiesta para pequeños valores de Pre / i en las otras transiciones teniendo mayor error la determinación de la ordenada al origen. Los valores

obtenidos muestran que el principal mecanismo de intercambio de población $2p_i$ para este tipo de descarga son las colisiones con átomos neutros. Valores típicos de N_a y N_e para las condiciones de trabajo son 10^{17} cm^{-3} y 10^{11} cm^{-3} dando una tasa de $3,6 \cdot 10^6 \text{ seg}^{-1}$ y $5,6 \cdot 10^3 \text{ seg}^{-1}$ respectivamente confirmando la afirmación realizada en nuestro anterior trabajo^[1].

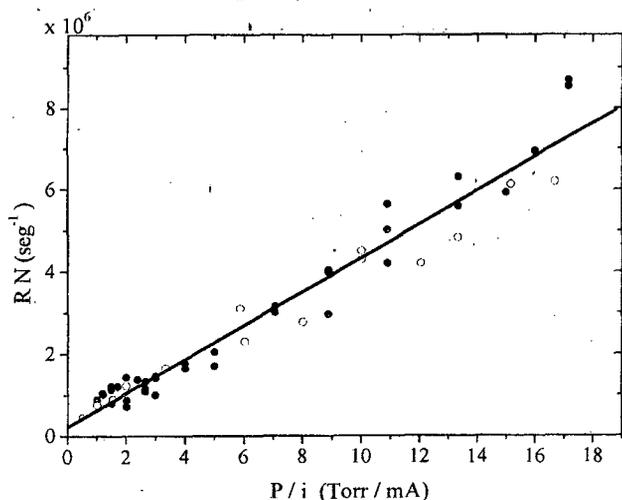


Figura 5. Coeficiente global de intercambio de población para la transición $2p_4 \rightarrow 2p_5$.

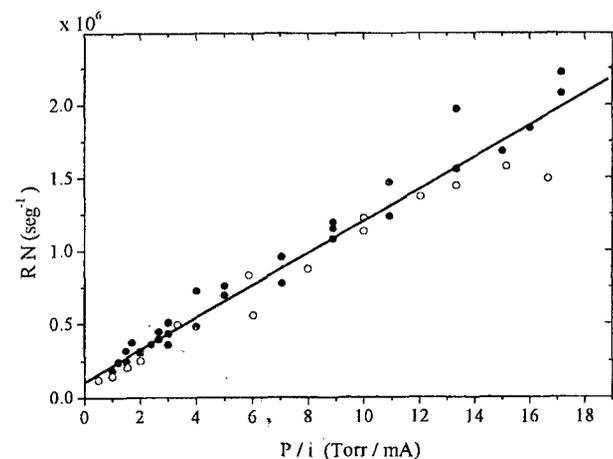


Figura 6. Coeficiente global de intercambio de población para la transición $2p_4 \rightarrow 2p_7$.

	ΔE (meV)	Re ($\text{cm}^3 \text{seg}^{-1}$)	Ra ($\text{cm}^3 \text{seg}^{-1}$)	Ra ^[4] ($\text{cm}^3 \text{seg}^{-1}$)
$2p_4 \rightarrow 2p_2$	23	$8.6 \cdot 10^{-8}$	$8.5 \cdot 10^{-13}$	$8.0 \cdot 10^{-13}$
$2p_4 \rightarrow 2p_3$	8	$5.6 \cdot 10^{-8}$	$3.6 \cdot 10^{-11}$	$1.7 \cdot 10^{-11}$
$2p_4 \rightarrow 2p_5$	10	$3.3 \cdot 10^{-7}$	$5.1 \cdot 10^{-11}$	$2.1 \cdot 10^{-11}$
$2p_4 \rightarrow 2p_7$	91	$1.6 \cdot 10^{-7}$	$1.4 \cdot 10^{-11}$	$2.2 \cdot 10^{-12}$

Tabla I. Valores del coeficiente de intercambio de población por colisiones con electrones Re y átomos Ra.

En la Tabla I es importante 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 estos coeficientes basado en un modelo de impulso semiclásico, en el que se supone mayor probabilidad de intercambio de población cuanto menor sea la diferencia de energía entre los niveles involucrados, no tendría validez.

Conclusiones

Se ha logrado determinar los valores de los coeficientes de intercambio de población por colisión con electrones y átomos desde el nivel $2p_4$ a los niveles $2p_2$, $2p_3$, $2p_5$ y $2p_7$.

Confirmamos 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. D'Accurso, F. A. Manzano, ANALES AFA 12(2000)84.
- [2] - V. B. Slezak, V. D'Accurso and F. A. Manzano, J. Opt. Soc. Am. B, 13 (1996) 2701.
- [3] - V. D'Accurso, F. A. Manzano, ANALES AFA 9(1997)68.
- [4] - F.C.M. Coolen et al., Physica 93C(1978)131.

Agradecimientos

Este trabajo ha sido parcialmente financiado por el subsidio N° 04155 (ANPCyT).