

Determinación de las poblaciones dinámicas de estados excitados del Neón

Dynamic population measurement in excited states of neon

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
La Salle 4397(B 1603 ALO), Villa Martelli, Pcia de Buenos Aires
e-mail: fmanzano@citefa.gov.ar

Utilizando la técnica de fluorescencia inducida por láser se determina el valor de las densidades instantáneas de las poblaciones de la primera y la segunda configuraciones ($1s_i$, $2 \leq i \leq 5$; $2p_j$, $1 \leq j \leq 10$, en notación de Paschen) excitadas del Neón. La existencia del fenómeno de atrapamiento de radiación impide el cálculo directo de la población de un dado nivel a partir del registro de las intensidades de fluorescencia asociadas. 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 de dicho atrapamiento. Sin embargo, mediante un método de procesamiento de las señales de fluorescencia inducida determinamos las evoluciones temporales y el valor absoluto de las poblaciones de los niveles inferiores $1s_i$. Al mismo tiempo, se obtienen las evoluciones relativas a su estado estacionario para las poblaciones de los niveles $2p_j$ y la relación entre sus poblaciones estacionarias. Los resultados son concordantes con las evoluciones registradas por técnicas de absorción y con los valores calculados con un modelo detallado para descargas de luminiscencia negativa.

Palabras claves: Fotofísica, Láser, Descargas eléctricas.

We have determined, by laser induced fluorescence, the time-evolution of Neon's population densities of the first and second excited configurations ($1s_i$, $2 \leq i \leq 5$; $2p_j$, $1 \leq j \leq 10$, in Paschen's notation). Owing to the influence of radiation trapping, it is impossible to compute the population of a given state by using the registered fluorescence signals. Moreover, on account of the strong radiative and collisional coupling between the mentioned populations, and the collisional processes in a given configuration, the radiation trapping coefficient varies along time. To overcome this problem, we have developed a signal processing algorithm for determining the time evolution and the absolute value of lower $1s_i$ levels populations. In addition, we have obtained the relative evolutions to the steady state of the $2p_j$ levels and the relationship among the steady-state populations. The results are close to those obtained either by absorption techniques or through a detailed model computer model of negative luminescence discharges.

Keywords: Photophysics, Laser, Electrical discharges.

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 ($2p_j$, $1 \leq j \leq 10$) (Fig.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 son niveles radiativos que decaen sobre los niveles de la primera configuración con tiempos de vida natural del orden de 50 ns. Los átomos en estos niveles están sometidos a procesos colisionales intraconfiguración con átomos y/o electrones intercambiando población.

Diversos procesos radiativos y/o colisionales con los distintos componentes del plasma generado en una descarga de cátodo hueco en Neón producen una distribución estacionaria de población en los niveles de energía. La absorción de un pulso luminoso sintonizado con la transición $1s_5 \rightarrow 2p_2$ altera dicha distribución, retornando las poblaciones de los niveles a sus valores de estado estacionario por medio de los procesos mencionados.

Conocer las densidades de población estacionaria de los distintos niveles y los procesos que determinan la dinámica de la restitución al estado estacionario es

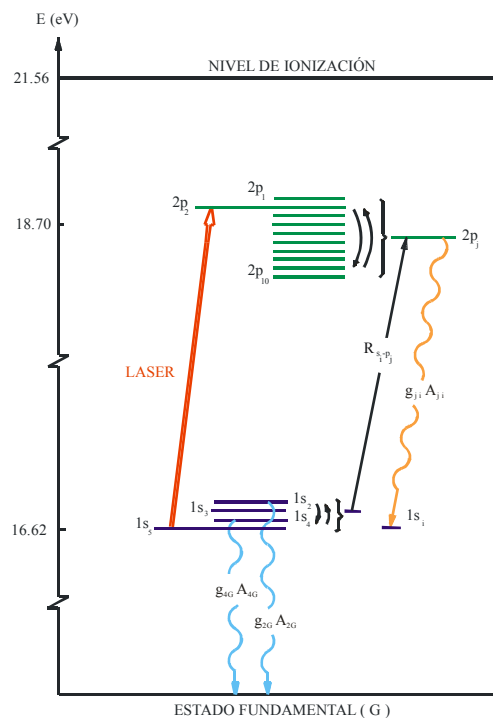


Figura 1. Esquema de los primeros niveles de energía del átomo de Neón.

importante para una correcta modelización de descargas de luminiscencia negativa.

Esta información es normalmente obtenida por medio de la técnica de absorción que conlleva a la resolución de diversos problemas experimentales vinculados a la detección de pequeñas señales superpuestas a un fondo importante. Esto implica la utilización de amplificadores y, debido a las fluctuaciones importantes de la emisión luminosa de la descarga, la necesidad de limitar el ancho de banda de detección con la consiguiente pérdida de información sobre los procesos rápidos que tienen lugar en el plasma. Además, en descargas de cátodo hueco en gases atómicos, se requiere la utilización de fuentes de radiación con un ancho de línea del orden de $2 \cdot 10^{-3}$ nm para la determinación precisa de las densidades de población.

En este trabajo se presenta un método de tratamiento de datos obtenidos a partir de la detección de la emisión fluorescente estacionaria e inducida que permite determinar las densidades de población de los niveles Is_i , la proporción entre las poblaciones de los estados $2p_j$ y la recuperación de estas densidades a sus valores de estado estacionario. El equipamiento utilizado es sencillo, con una buena resolución temporal (4,2 ns) y sólo se requiere de la fuente de radiación que posea un ancho de línea tal que no produzca la excitación simultánea de dos transiciones.

Teoría

Los niveles de la primera configuración excitada del Neón están caracterizados por una gran sección eficaz de absorción ($\sim 6 \cdot 10^{-16}$ m² para las transiciones $Is_i \rightarrow 2p_j$). Este hecho hace necesario considerar el fenómeno de atrapamiento de radiación que disminuye la probabilidad de transición de los niveles $2p_j$ en el plasma. Teniendo en cuenta este efecto, la intensidad de luz medida para la transición $2p_j \rightarrow Is_i$ es:

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

donde A_{ji} es la probabilidad de transición del átomo libre, $P_j(t)$ es la densidad de población del nivel $2p_j$ y $g_{ji}(t)$ es el factor de escape ($g_{ji} \leq 1$) que, de acuerdo a la teoría de atrapamiento^[1,2] es:

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

siendo $S_i(t)$ la densidad de población del nivel Is_i , g_j y g_i las degeneraciones de los niveles, λ_{ji} la longitud de onda de la transición, v la velocidad media de los átomos a la temperatura del gas y L la longitud del plasma. En este marco, las intensidades de fluorescencias a ser detectadas desde un dado nivel $2p_j$ a distintos niveles Is_i dependen no solo de la probabilidad de transición (A_{ji}) sino que también de la densidad instantánea de población del nivel inferior $S_i(t)$ a través del factor de escape. Si se considera la emisión a dos niveles Is_i y Is_m y utilizando las Ec.1 y 2 se puede calcular la densidad de población del nivel $2p_j$ y establecer las siguientes igualdades:

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

Las densidades de población $S_i(t)$ ($2 \leq i \leq 5$) son incógnitas cuyos valores pueden ser determinados, para cada instante, de la resolución de un sistema de ecuaciones formado por expresiones similares a la última igualdad de la Ec.3. Para plantear un sistema de cuatro ecuaciones independientes es necesario la medida de las intensidades de fluorescencia de ocho transiciones $2p_j \rightarrow Is_i$ distintas que involucren los cuatro niveles de la primera configuración.

Una vez obtenido los valores de $S_i(t)$ y con la medida de la intensidad de luz correspondiente, se puede calcular de la Ec.1 la densidad de población $P_j(t)$. Estos últimos valores de densidades son relativos al valor estacionario de uno de ellos debido a que el equipo no se encuentra calibrado en intensidad.

Experiencia

Las mediciones de fluorescencia se realizaron con el arreglo experimental de la Fig.2. La radiación de un láser de colorantes bombeado por un Nd-YAG pulsado (ATAM = 5 ns) sintonizado en la transición $Is_5 \rightarrow 2p_2$ atravesaba una lámpara de cátodo hueco pasante construida en el laboratorio. La emisión fluorescente estacionaria e inducida por la iluminación láser era focalizada en la rendija de un espectrómetro (ESP) con el cual se detecta la emisión de cada transición $2p_j \rightarrow Is_i$. La señal obtenida por un fotomultiplicador (FM) era promediada con un osciloscopio digital Tektronix 560A (OSC) y transferida a una computadora para su posterior procesamiento. El tiempo de respuesta del sistema era de 4,2 ns y el tiempo de muestreo de 1 ns.

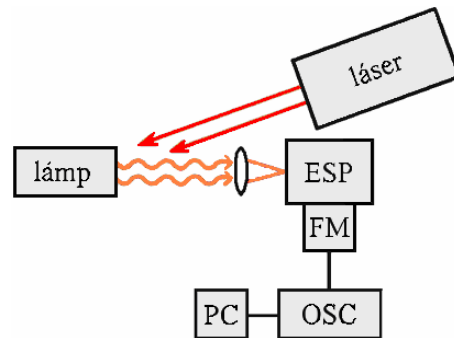


Figura 2. Arreglo experimental.

Aplicando el tratamiento de datos descrito a las medidas de intensidad de fluorescencia en ausencia de irradiación láser se obtienen los gráficos de las Fig.3 y 4 donde se muestran, con símbolos llenos, los valores de las densidades de población estacionaria en función de la corriente para presiones de llenado de la lámpara de cátodo hueco de 5 y 15 Torr.

También se muestran en dichas figuras, con símbolos vacíos, los resultados de densidad de población de los niveles Is_2 , Is_4 y Is_5 obtenidos por nosotros^[3] utilizando el método de absorción. Como se puede observar, existe una muy buena concordancia entre ambos métodos.

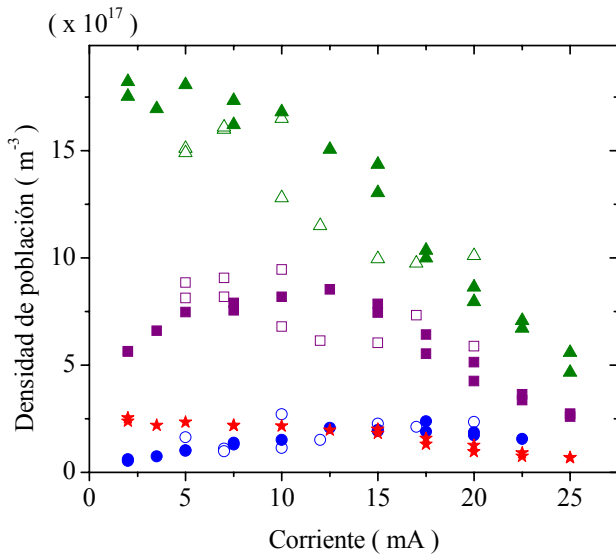


Figura 3. Densidades de población estacionaria de los niveles Is_i en función de la corriente a una presión de 5 Torr. Símbolos vacíos: Medida por absorción. Símbolos llenos: Medida por fluorescencia. \blacktriangle : Is_5 , \blacksquare : Is_4 , \blackstar : Is_3 y \bullet : Is_2 .

Con los resultados de densidad de población estacionaria de los niveles Is_i se calcula el factor de escape, el cual, junto con las medidas de fluorescencia, dan como resultado las densidades de poblaciones estacionarias de los niveles $2p_j$ relativas. En la Fig.5 se muestran los resultados obtenidos para una presión de 5 torr y una corriente de 15 mA. Este resultado cobra relevancia si se tiene en cuenta que la medición de éstas magnitudes por medio del método de absorción es de difícil realización debido a la muy baja densidad de población de los niveles $2p_j$ ($\sim 10^{14} \text{ m}^3$).

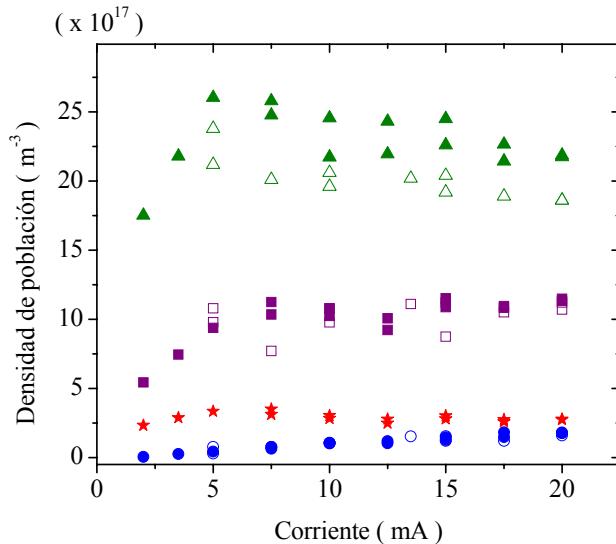


Figura 4. Densidades de población estacionaria de los niveles Is_i en función de la corriente a una presión de 15 Torr. Símbolos vacíos: Medida por absorción. Símbolos llenos: Medida por fluorescencia. \blacktriangle : Is_5 , \blacksquare : Is_4 , \blackstar : Is_3 y \bullet : Is_2 .

En las Fig.6 y 7 se presentan las recuperaciones al estado estacionario después de la iluminación láser de los valores de densidad de población de los niveles Is_3 y Is_5 a presiones de 5 y 15 Torr obtenidas de la resolución del sistema de ecuaciones. Estas evoluciones muestran, para tiempos superiores a 5 μs , una razonable concordancia

con las medidas registradas por el método de absorción^[3]. Debe destacarse que las actuales determinaciones tienen una resolución temporal de 4,2 ns que no era posible

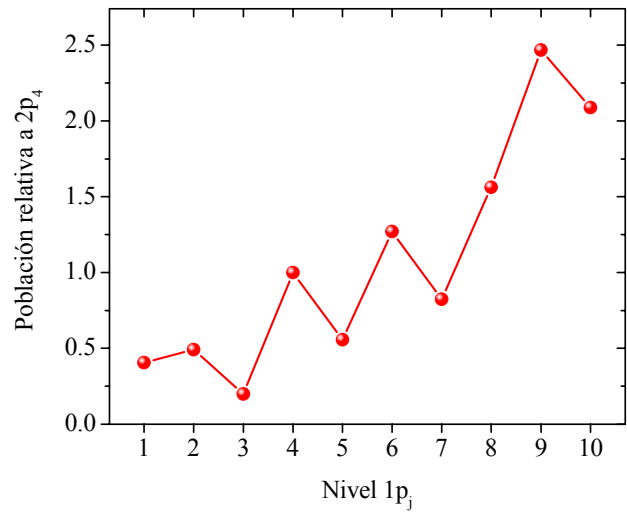


Figura 5. Poblaciones de $2p_j$ relativas a $2p_4$ para una presión de 5 Torr y una corriente de 15 mA.

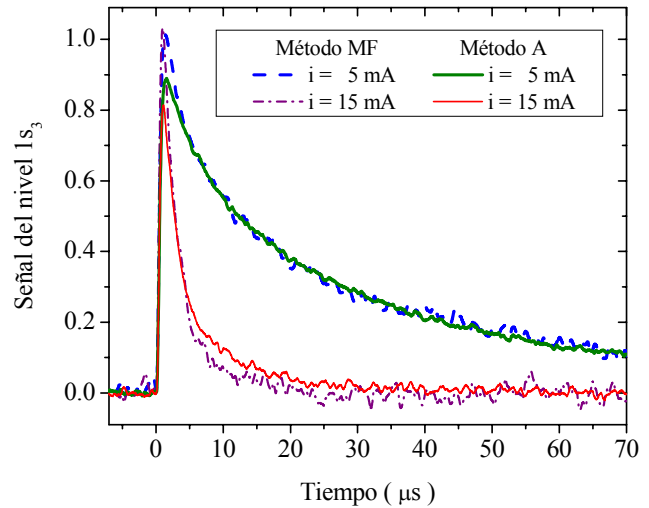


Figura 6. Variación de las densidades de población del nivel Is_3 después de la iluminación láser obtenidos con las medidas de absorción (A) y de fluorescencia (MF).

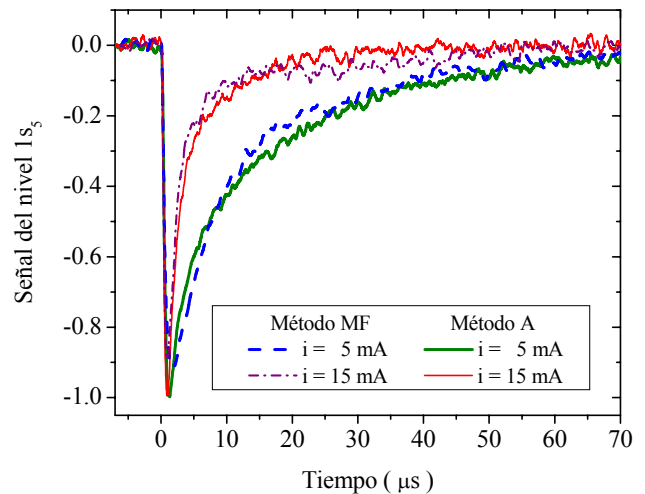


Figura 7. Variación de las densidades de población del nivel Is_5 después de la iluminación láser obtenidos con las medidas de absorción (A) y de fluorescencia (MF).

lograr en las medidas de absorción debido a la necesidad de limitar el ancho de banda para lograr una aceptable relación señal a ruido.

En la Fig.8 se muestra la evolución temporal de las densidades de población de los 4 niveles de la primera configuración excitada al resolver el sistema de ecuaciones. La población del nivel $1s_5$ disminuye en los primeros 20 ns debido a la excitación láser lo cual es concordante con el ancho de pulso utilizado y el tiempo de respuesta del sistema de detección. Posteriormente, se observa una recuperación rápida de la población de dicho nivel debido a los decaimientos desde los niveles $2p_j$ y, por el mismo motivo, un incremento de población de los otros niveles $1s_i$. En tiempos superiores a los 200 ns, las poblaciones de los $2p_j$ toman valores próximos a los de estado estacionario y los 4 niveles $1s_i$ evolucionan hacia el equilibrio según el efecto de los diferentes procesos radiativos y/o colisionales con los distintos componentes del plasma.

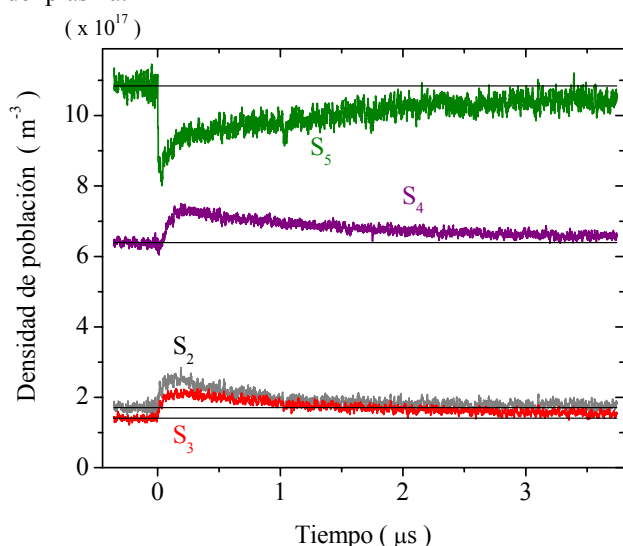


Figura 8. Variación de las densidades de población de los niveles $1s_i$ después de la iluminación láser. Presión de 5Torr y corriente de 15 mA.

Con los resultados de variación de la densidad de población de los niveles $1s_i$ se calcula la evolución de la población de los niveles $2p_j$ relativa a su valor estacionario para una presión de 5 torr y una corriente de 15 mA.

Un resultado interesante, relacionado con la transición $2p_9 \rightarrow 1s_5$, pone de relieve la importancia del atrapamiento de radiación.

Este nivel está acoplado radiativamente sólo con el nivel $1s_5$ y las medidas de fluorescencia inducida consisten de un importante incremento de intensidad en forma de pulso y posteriormente de una lenta disminución de la intensidad hasta alcanzar sus valores estacionarios (Fig.9, trazo 1).

Sin embargo, al calcular la evolución de la población de dicho nivel con el método ya descrito, se encuentra que en todo instante dicha densidad toma valores inferiores al estado estacionario (Fig.9, trazo 3) tal como lo predice el modelo de balance detallado para descargas de cátodo hueco^[4] desarrollado en el laboratorio.

Esta aparente contradicción se puede explicar considerando el atrapamiento de radiación. El rápido

despoblamiento del nivel $1s_5$ por el pulso láser disminuye la magnitud del atrapamiento haciendo el plasma más transparente para esta transición. Esta mayor pérdida de población por emisión sumada a una menor excitación electrónica desde el nivel $1s_5$ provoca una disminución de la población del nivel $2p_9$ siendo, por lo tanto, esperable una intensidad emitida inferior a su valor estacionario. No obstante, el incremento de la transparencia es más importante y se registra una mayor la intensidad en la emisión. Esta emisión disminuye a medida que la población de $1s_5$, y por ende la transparencia, recupera su valor.

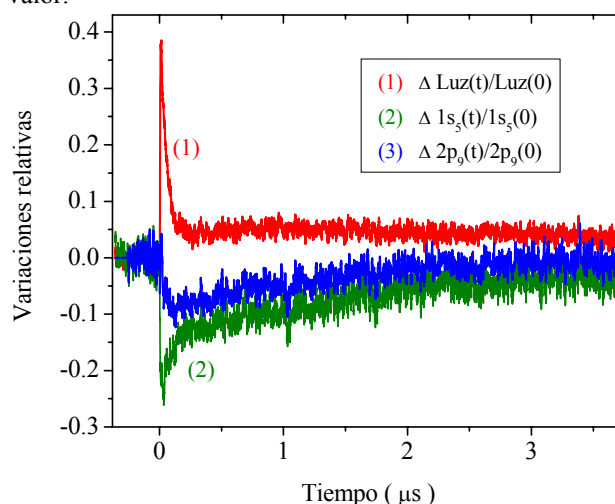


Figura 9. Variaciones relativas a sus estados estacionarios de la fluorescencia inducida de la transición $2p_9 \rightarrow 1s_5$ y de las densidades de población de los niveles $1s_5$ y $2p_9$.

Conclusiones

En base a la teoría de atrapamiento de radiación se desarrolló un proceso de cálculo para las densidades de población de los niveles de la primera y segunda configuración del Neón, que permite la determinación de sus evoluciones al estado estacionario con una resolución temporal de 4,2 ns.

Los resultados relacionados con la primera configuración, permiten poner de relevancia el efecto sobre la dinámica de restitución al estado estacionario de los procesos rápidos que ocurren en el plasma y facilitan la comparación con los resultados teóricos.

El método permite la realización de experiencias de fácil implementación, con la utilización de un equipamiento de poca sofisticación y una buena resolución temporal debido a la gran relación señal a ruido.

Referencias

- 1 - T. Holstein. *Phys.Rev.* **83**(1951)1159.
- 2 - T. Fujimoto, C. Goto and K. Fukuda. *Phys.Scr.* **26** (1982) 443.
- 3 - *Estudios espectroscópicos en descargas de cátodo hueco en Neón.* V.D'Accurso y F. Manzano. *Anales AFA* **15** (2003) 94-98.
- 4 - *Influence of the neon $1s_i$ configuration on the optogalvanic effect at the 594.5 nm ($1s_5-2p_4$) and 585.2 nm ($1s_2-2p_1$) lines.* V.B.Slezak, V.D'Accurso and F.A.Manzano, *J. Opt. Soc. Am. B* **13** (1996)2701-2707.