

# ESPECTROSCOPIA OPTOGALVANICA Y FLUORESCENCIA EN DESCARGAS ELECTRICAS DE NEON

M.Murphy\*, D.Schinca\*\*

Centro de Investigaciones Opticas (CIOp), Casilla de Correo 124, 1900 La Plata,

H.F. Ranea-Sandoval\*\*\*

Instituto de Física "Arroyo Seco", Facultad de Ciencias Exactas,

Universidad Nacional del Centro de la Provincia de Buenos Aires, Pinto 399, 7000 Tandil.

Cuando la frecuencia de un láser es sintonizada con una transición entre dos niveles de un átomo o ión en una descarga gaseosa, el cambio en las densidades de población debido al bombeo óptico se traduce en una variación de la corriente eléctrica circulante (efecto optogalvánico).

En el presente trabajo se muestran las características del espectro optogalvánico resuelto en tiempo del Neón I en distintos tipos de descargas y su dependencia con determinados parámetros experimentales. Se analiza, además, la diferencia entre los espectros de fluorescencia obtenidos con y sin el láser sintonizado en una dada transición y su relación con la población de los niveles involucrados.

## I. INTRODUCCION

Cuando una descarga gaseosa es iluminada por radiación resonante con una transición de los átomos o iones presentes, se produce un cambio de las poblaciones respectivas, que, debido a los procesos de ionización, se traduce en un cambio de la corriente circulante que se detecta como variación de tensión a través de una dada resistencia [1]. Este es el llamado efecto optogalvánico (E.O.G.).

Desde su introducción como técnica láser en 1976 [2], se ha publicado un gran número de trabajos sobre E.O.G., que se hallan convenientemente condensados en un reciente artículo de *review* [3]. En los mismos, los autores utilizan diversos tipos de descargas gaseosas (columna positiva, cátodo hueco, lámparas de alta presión, etc.) bajo diferentes condiciones experimentales (presión, corriente, mezcla de gases, etc.) y con distintos tipos de láseres. Esto hace difícil comparar los diversos resultados de forma de sistematizar un estudio sobre las características y generación del E.O.G. en descargas gaseosas.

Presentamos aquí un estudio comparativo resuelto en tiempo de las características de la señal OG pulsada en Ne para descargas longitudinales y de cátodo hueco.

También presentamos un estudio de fluorescencia inducida por láser (LIF) en el sistema de niveles  $2p \rightarrow 1s$  (figura 1), que dan lugar a la señal O.G. Se discuten mecanismos de población de los niveles involucrados.

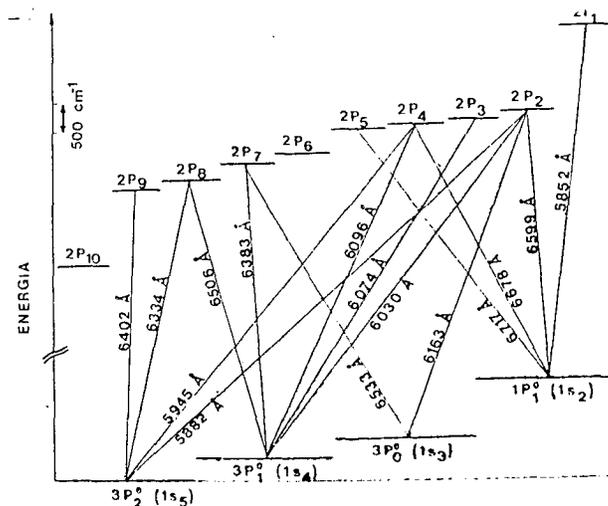


Figura 1: Diagrama de Grotrian parcial del Ne I. Se muestran las transiciones del sistema  $2p \rightarrow 1s$  (notación de Paschen) mencionadas en el trabajo.

\* Becario CONICET  
\*\* Investigador CICPBA  
\*\*\* Investigador CONICET

## II. MONTAJE EXPERIMENTAL

El circuito utilizado en todos los casos puede verse en la figura 2. La celda de descarga estaba conectada a una fuente de tensión continua (entre 300 y 600 V), cerrando el circuito una resistencia de balasto de 6 k $\Omega$ . La caída de tensión en ésta se observaba en el osciloscopio a través de un capacitor que desacoplaba la componente continua.

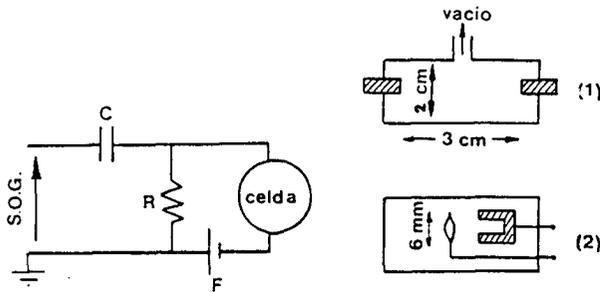


Figura 2: Circuito de descarga y de toma de señal.  $C = 0.047 \mu\text{F}$ ;  $R = 6 \text{ k}\Omega$ ;  $F$ : fuente de tensión continua. (1) celda de descarga longitudinal. (2) celda de cátodo hueco.

Se usaron dos tipos de celdas: (1) de electrones planos y (2) de cátodo hueco, cuyas formas y dimensiones se muestran también en la figura 2. La primera de las celdas estaba conectada a una línea de vacío que permitía su evacuación y posterior llenado con Ne de alta pureza (99,95%) a presiones entre 0,5 y 10 torr. La segunda era de tipo comercial con cátodo (ciego) de Na/K a presión fija de 5 torr de Ne.

El láser usado era de colorante bombeado por lámpara de *flash*, entre 590 y 620 nm y entre 630 y 670 nm, con un ancho de 1  $\mu\text{s}$  y 1 kW de potencia. En una de las experiencias, se usó un láser de colorante continuo entre 590 y 620 nm, cuyo haz, modulado mecánicamente (*chopper*) y sintonizado en determinada transición se hacía incidir sobre la descarga. La fluorescencia inducida resultante se analizaba con un sistema monocromador fotomultiplicador, y la salida de éste se detectaba en forma sincrónica a través de un amplificador *lock-in*.

## III. CARACTERISTICAS DE LA SEÑAL OPTOGALVANICA PULSADA

### A. Descargas longitudinales

En este tipo de descargas, el láser incidía perpendicularmente al eje longitudinal de la celda, de tal forma que desplazando ésta paralelamente al mismo era posible elegir la región de la descarga a estudiar. Así, se observó que las señales OG disminuían rápidamente en intensidad al alejarse del *glow* negativo y eran prácticamente nulas en la columna positiva. Por esta razón las medidas aquí presentadas corresponden a aquella región de la descarga.

La intensidad, signo y comportamiento temporal de la señal OG dependen, para una dada descarga, de la transición a la cual se sintonizaba el láser. Las características típicas de las mismas y su dependencia con determinados parámetros pueden verse en la figura 3.

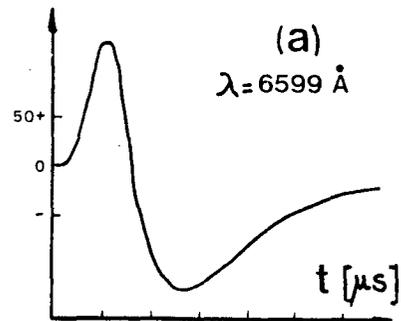


Figura 3 a.

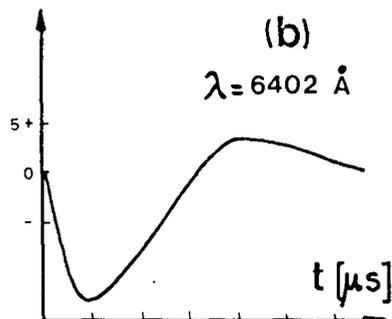


Figura 3 b.

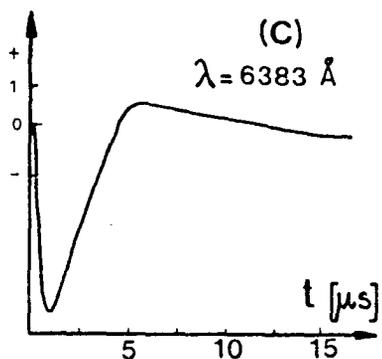


Figura 3 c.

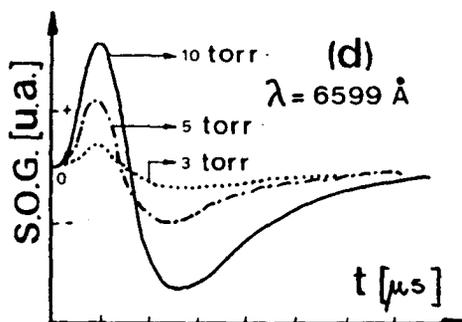


Figura 3 d.

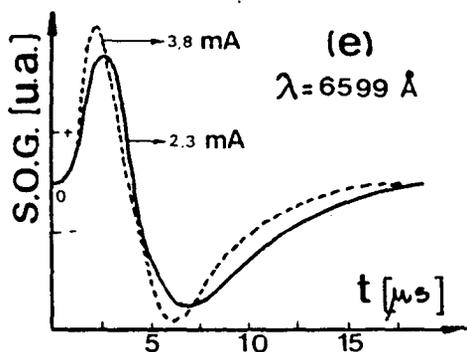


Figura 3 e.

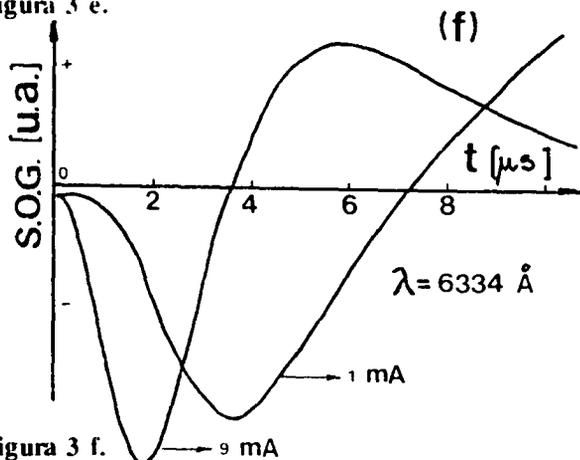


Figura 3 f.

Figura 3: Características de la señal OG en descargas longitudinales. (a), (b) y (c): evolución temporal.

(d) variación con la presión.

(e), (f) variación con la corriente.

Como se ve en 3 (a), (b) y (c), todas las líneas observadas muestran un comportamiento temporal "suave", que termina entre 15 y 20  $\mu\text{s}$  después de iniciado el pulso láser. Es de notar también la diferente polaridad de las señales, dependiendo de la transición elegida. Esta polaridad (primer pico positivo y segundo negativo o viceversa) no cambian, para las líneas estudiadas, con parámetros tales como corriente, presión ó intensidad del láser.

También es posible apreciar la diferencia en amplitudes relativas entre una y otra señal, las que resultan ser funciones crecientes de la intensidad de iluminación dentro del rango explorado. En cambio, la razón entre máximo y mínimo no parece depender de la intensidad del láser.

Las dependencias de las señales OG con la presión y la corriente se muestran en la figura 3 (d), (e) respectivamente. En la primera se observa que al disminuir la presión, disminuye la intensidad general de la señal, hecho común a todas las líneas estudiadas. En la segunda, puede verse que la amplitud aumenta con la corriente, presentando a valores altos de ésta un leve efecto de saturación. También sufre una "compresión" temporal al aumentar la corriente, lo que puede verse con mayor resolución en la figura 3 (f). Es de notar también que, en este tipo de descargas, se observa un retraso en el comienzo de la señal OG respecto al pulso láser. El retraso está comprendido entre 150 y 250 ns, dependiendo de la línea particular tratada, y disminuye al aumentar la corriente.

## B. Descargas de cátodo hueco

Vamos a describir aquí las características de la señal OG observadas en una descarga de cátodo hueco. En este caso, el haz del láser era paralelo al eje longitudinal del cátodo e iluminaba uniformemente casi todo el *glow*. Al ser el cátodo de Na/K, se generaba inicialmente una señal rápida debida a efecto fotoeléctrico para longitudes de onda menores que 630 nm, la que era fácilmente restada de los trazos OG.

Las señales OG en este tipo de descarga mues-

tran algunas diferencias notables con respecto a las observadas en descargas longitudinales.

FIG. 3

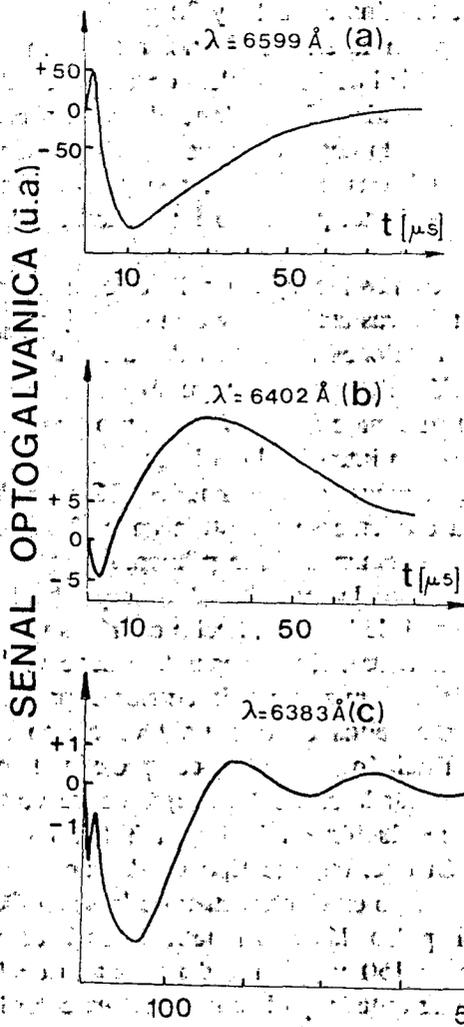


Figura 4: Evolución temporal de la señal OG cátodo hueco.

La figura 4 muestra las mismas señales OG que la figura 3, pero obtenidas en cátodo hueco. Puede verse que, en general, la amplitud es similar a la obtenida anteriormente y si bien la polaridad de cada una de ellas no ha cambiado, tanto la razón máximo/mínimo como la duración de la señal se modifican notablemente. En todos los casos observados, la amplitud del segundo pico es mucho mayor que la del primero, relación que no varía con la corriente. Tampoco se observó in-

versión de polaridad al variar la corriente o la intensidad del láser. Sólo se observó cambio de signo en la señal OG con la corriente para la transición en 6030 Å al trabajar con el láser continuo. Este efecto ha sido mencionado por algunos autores [4,5] para otras transiciones o tipos de descarga.

Las señales duraban típicamente entre 100 y 500 μs, llegando algunas hasta el milisegundo. El comportamiento temporal tardío de las mismas (típicamente posterior a los 50-80 μs) mostraba una fuerte dependencia con la corriente, no así la parte inicial. Esto puede verse en la figura 5, donde se muestra el espectro temporal OG de dos transiciones que parten de distintos niveles inferiores.

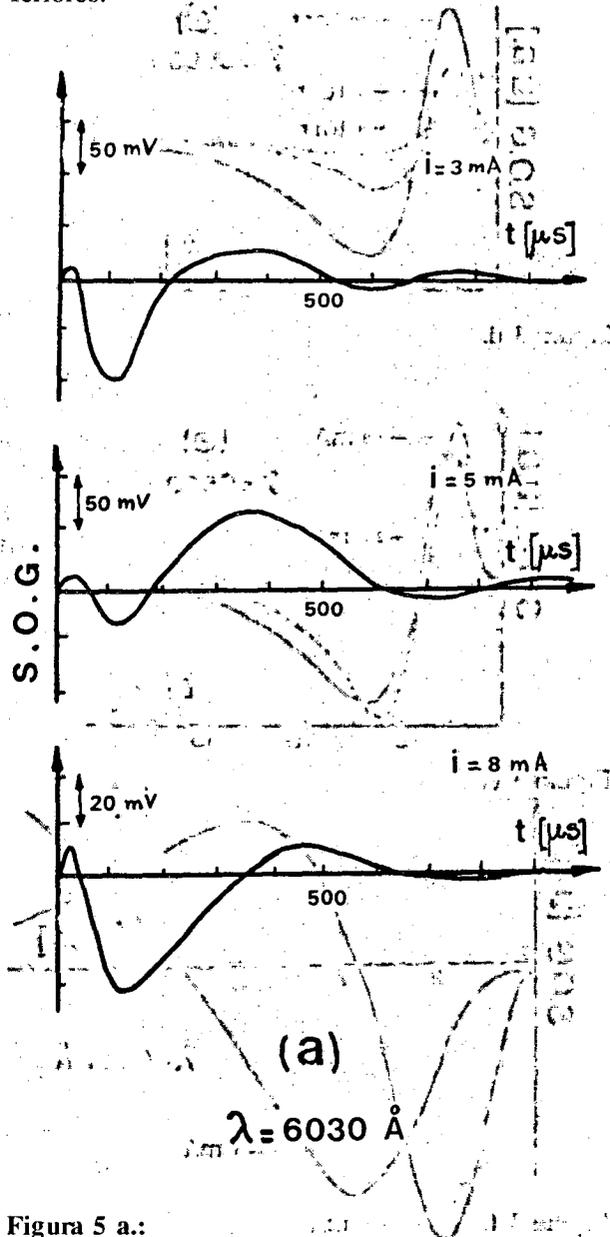


Figura 5 a.:

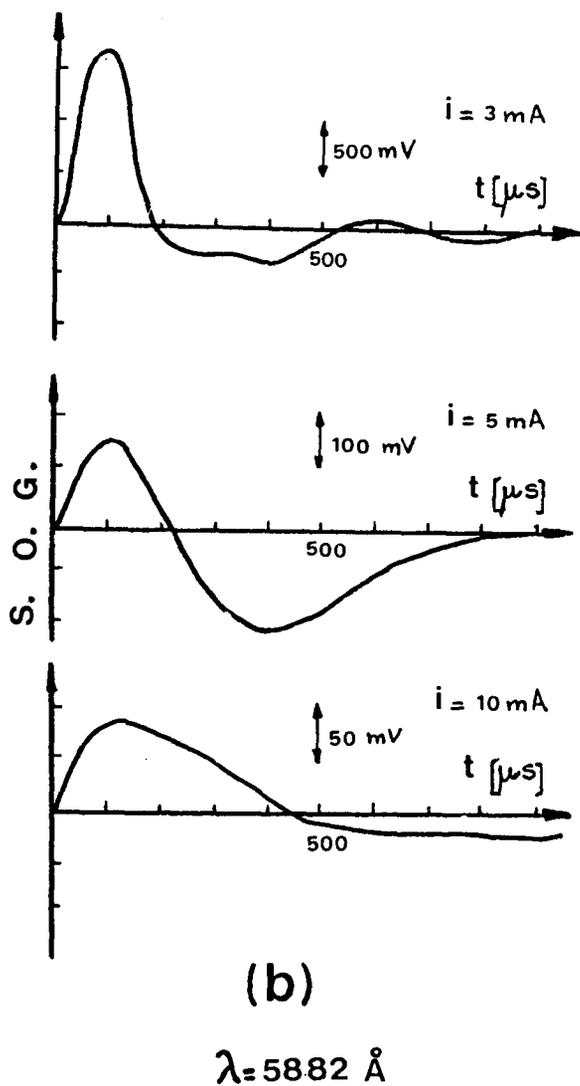


Figura 5: Variación con la corriente del espectro temporal OG de transiciones con distinto nivel inferior e igual nivel superior. (a)  $6030 \text{ \AA}$  ( $1s_4 \rightarrow 2p_2$ ). (b)  $5882 \text{ \AA}$  ( $1s_5 \rightarrow 2p_2$ ).

En general y dentro del rango espectral estudiado, se observó que aquellas transiciones que comparten un mismo nivel inferior presentan comportamiento temporal similar entre sí, para una dada corriente de celda. Este hecho constituye una marcada diferencia con lo observado para descargas longitudinales.

Cabe señalar que, para descargas de cátodo hueco, algunos de nuestros resultados contradicen la información de Caesar y Heully [6] en el sentido que todas las transiciones que parten de los niveles  $1S_3$ ,  $1S_4$  y  $1S_5$  muestran señales OG primero negativas y luego positivas mientras que las que

parten del nivel  $1S_2$  son la imagen especular de las anteriores. En la figura 5 (a) se puede ver la señal OG correspondiente a  $6030 \text{ \AA}$  que parte del nivel  $1S_4$  (figura 1) y no cumple con la condición señalada en la referencia [6]. Lo mismo ocurre con las transiciones en  $6096$  y  $6074 \text{ \AA}$ .

#### IV. ESPECTROS DE FLUORESCENCIA INDUCIDA POR LASER

El arreglo experimental descrito en el último párrafo de la sección II, permitía observar la diferencia en la fluorescencia de cualquier línea cuando el láser, sintonizado en determinada transición  $1s \rightarrow 2p$ , iluminaba la descarga y cuando no lo hacía. Las longitudes de onda de excitación elegidas corresponden a transiciones con nivel superior común ( $5882 \text{ \AA}$ ,  $6030 \text{ \AA}$  y  $6163 \text{ \AA}$ ).

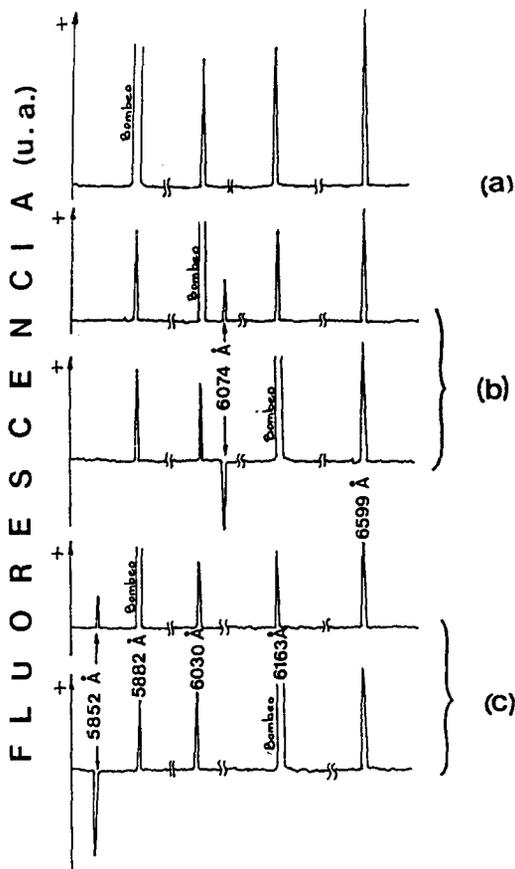


Figura 6: Espectros parciales de fluorescencia inducida por láser en cátodo hueco. (a) fluorescencia de líneas que comparten el nivel superior de bombeo; láser de bombeo en  $5882 \text{ \AA}$ . (b) y (c) fluorescencia de líneas que no comparten el nivel superior de bombeo. Láser de bombeo en  $6030 \text{ \AA}$  y  $6163 \text{ \AA}$  (b) y en  $5882 \text{ \AA}$  y  $6163 \text{ \AA}$  (c).

Algunos resultados típicos se muestran en la figura 6. Lo primero que se observa es que la fluorescencia correspondiente a transiciones que comparten el nivel superior de bombeo presentan cambios positivos debido al aumento de población por absorción resonante (figura 6a). Por otro lado, líneas que no comparten el nivel superior de bombeo, como la 6074 Å o la 5852 Å, muestran una diferencia de fluorescencia positiva o negativa dependiendo de la longitud de onda de excitación (figura 6b y 6c, respectivamente). Un estudio similar con un arreglo experimental parecido fue llevado a cabo por Sasso et al. [7] en columna positiva en Ne.

## V. DISCUSION Y CONCLUSIONES

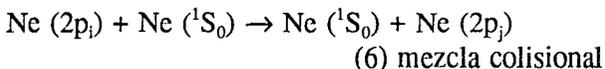
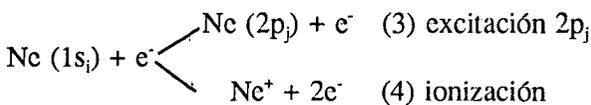
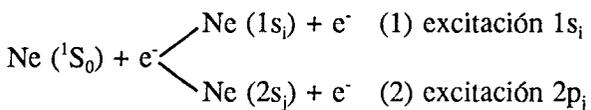
Los resultados obtenidos en descargas longitudinales indican que los procesos de recuperación del equilibrio en la descarga no van más allá de los 20 µs. Este valor es similar al tiempo de relajación de los niveles 1s medido por Fujimoto et al. [8]. Estos autores proponen que la vuelta al equilibrio está fuertemente dominada por la recuperación de los niveles metaestables.

Con respecto al origen de la polaridad, algunos autores [6,8] proponen que las transiciones con nivel inferior metaestable generan señales OG negativas mientras que las que parten de un nivel radiativo muestran el comportamiento inverso. Nuestras observaciones en 6402 Å y 6334 Å (1s<sub>5</sub>) cumplen con lo primero, mientras que las líneas en 6599 Å, 6678 Å y 6717 Å (1s<sub>2</sub>) cumplen con lo segundo. Sin embargo existen líneas como las 6304 Å, 6383 Å y 6506 Å que parten de un nivel radiativo (1s<sub>4</sub>) y tienen espectros temporales OG de metaestables. Al estar el nivel 1s<sub>4</sub> conectado ópticamente al fundamental, el efecto de "radiation trapping" es muy marcado para las presiones de trabajo y provoca un aumento de su vida media, convirtiéndolo casi en metaestable, lo que explicaría el comportamiento de las tres últimas líneas mencionadas. Sin embargo, el mismo razonamiento se puede hacer para el nivel 1s<sub>2</sub>, lo que inhibiría entonces la interpretación del comportamiento de las transiciones que parten de este nivel. Con estos datos no resulta posible establecer un criterio claro que permita relacionar la polaridad de la señal con los niveles atómicos involucrados. Nuestros resultados parecen más bien indicar que la polaridad y forma de la señal OG dependen tanto del nivel inferior como del supe-

rior en una forma no trivial.

La marcada diferencia en duración y forma tardía de la señal OG pulsada en cátodo hueco respecto de la descarga longitudinal, debe referirse a que en aquél existe una mayor densidad de iones y electrones en una región libre de campo, de tal forma que los procesos colisionales y de recombinación adquieren preponderancia [9]. Así, la mayor duración de la señal OG y la corriente puede atribuirse a la mayor actividad colisional de estas descargas.

Las observaciones hechas en cátodo hueco sumadas a los resultados obtenidos en la experiencia de LIF, sugieren que los procesos de colisión (tasas de ionización, de excitación y mezcla colisional) junto con los procesos radiativos, afectan el ritmo de población de los niveles atómicos, de manera que al inducir un cambio en la población de un par de ellos por absorción de la radiación láser, la población de los demás se altera de una forma que depende fuertemente del par de niveles involucrados en la absorción. Un ejemplo de esto puede verse en los resultados que muestra la figura 6b. Tomando en cuenta que los procesos relevantes en la descarga son:



y teniendo en cuenta los niveles correspondientes a las transiciones de la figura 6b, estos resultados pueden interpretarse incorporando los procesos (3) entre los niveles 1s<sub>3</sub> → 2p<sub>3</sub> y 2p<sub>2</sub> → 2p<sub>3</sub> respectivamente: al excitar con 6030 Å la intensidad de la línea 6074 Å aumenta debido a que el proceso (6) transfiere parte del exceso de población del 2p<sub>2</sub> al 2p<sub>3</sub>. Pero al excitar con 6163 Å se quita población al 1s<sub>3</sub> lo que reduce el proceso (3) de tal forma que el proceso (6) no puede compensar en este caso la disminución provocada por aquél, y la fluorescencia de la 6074 Å es ahora negativa.

Esta dependencia de la fluorescencia inducida

con el par de niveles de absorción, sugiere la existencia de un delicado balance entre los procesos de excitación-desexcitación. El mecanismo de mezcla colisional entre los niveles 2p puede dar lugar a una redistribución de la población de los niveles 1s dependiente de la longitud de onda de excitación. Si bien los resultados generales concuerdan con los de Sasso et al. [7], nuestras observaciones parecen indicar que la población final, y por lo tanto la señal OG, depende del par de niveles involucrados en la absorción; más que del nivel inferior [7,8]. Se halla en progreso el análisis de un modelo de población que contemple los distintos procesos microscópicos y reproduzca los espectros obtenidos.

Se realizó un estudio comparativo resuelto en tiempo de la señal OG pulsada en descargas longitudinales y de cátodo hueco, como así también se obtuvieron espectros de fluorescencia inducida por láser, en Ne. Los resultados sugieren que hay un delicado balance entre los procesos de excitación y desexcitación, que hacen depender a la señal O.G. del par de niveles de absorción.

## REFERENCIAS

- [1] P.D. Foote and F.L. Mohler, *Phys. Rev.* **26**, 195 (1926).
- [2] R.B. Green, R.A. Keller, G.G. Luther, P.K. Schenck and J.C. Travis, *Appl. Phys. Lett.* **29**, 727 (1976).
- [3] B. Barbieri, N. Beverini and A. Sasso, *Rev. Mod. Phys.* **62**, 603 (1990).
- [4] W.B. Bridges, *J.O.S.A.* **68**, 352 (1978).
- [5] D.M. Kane, *J. Appl. Phys.* **56**, 1267 (1984).
- [6] T. Caesar and J.L. Heully, *Opt. Comm.* **45**, 258 (1983).
- [7] A. Sasso, M. Ciocca and E. Arimondo, *J.O.S.A. B* **5**, 1484 (1988).
- [8] Fujimoto, Y. Uetani, Y. Sato, Ch. Goto and K. Fukuda, *Opt. Comm.* **47**, 111 (1983).
- [9] C.S. Willett, "*Introduction to gas laser: Population inversion mechanisms*" Pergamon Press, Oxford (1974).

CEILAP  
CITEFA - CONICET  
ZUFRIATEGUI Y VARELA  
1603 VILLA MARTELLI  
REPUBLICA ARGENTINA