

# 01 О механизме селективного заселения уровня $3p_1$ атома неона в He–Ne-плазме

© В.А. Иванов, Ю.Э. Скобло

Санкт-Петербургский государственный университет,  
Санкт-Петербург, Россия  
e-mail: v.a.ivanov@spbu.ru

Поступила в редакцию 06.09.2023 г.

В окончательной редакции 02.04.2024 г.

Принята к публикации 18.05.2024 г.

В спектроскопических исследованиях гелий-неоновой плазмы, проведенных ранее, была обнаружена ярко выраженная селективность заселения уровня  $3p_1$  (по Пашену), верхнего из группы уровней конфигурации  $2p^54p$  атома Ne. По мере роста давления гелия в линии 352.05 nm ( $3p_1 \rightarrow 1s_2$ ) концентрировалось до 60% интенсивности всех переходов  $2p^54p \rightarrow 2p^53s$ . В настоящей работе предложен механизм роста относительной населенности уровня  $3p_1$  при увеличении давления He, связанный с особенностями столкновительной кинетики состояний  $3p_i$  конфигурации  $2p^54p$ . Причиной значительно более быстрого опустошения нижних уровней  $3p_i$  ( $i \geq 2$ ) по сравнению с  $3p_1$ , по-видимому, являются особенности взаимного расположения адиабатических термов системы  $\text{Ne}(2p^54p) + \text{He}(1s^2\ ^1S_0)$ . Механизм формирования селективного заселения уровня  $3p_1$ , рассмотренный в данной работе, может реализоваться в смеси гелия с неоном и не может реализоваться в чистом неооне, что соответствует результатам спектроскопических исследований. Проведены модельные расчеты части спектра, относящейся к переходам  $3p_1, 3p_4, 3p_2 \rightarrow 1s_j$ , при фиксированном распределении потоков заселения состояний  $3p_1, 3p_4, 3p_2$  и различных давлениях гелия. Наблюдается хорошее соответствие результатов измерений и результатов численного моделирования.

**Ключевые слова:** гелий-неоновая плазма, селективное заселение, неупругие столкновения атомов, адиабатические термы, численное моделирование заселения возбужденных состояний.

DOI: 10.61011/OS.2024.07.58890.5540-24

## Введение

Селективное заселение отдельных возбужденных состояний атомов и молекул, как правило, является необходимым условием для того, чтобы газовая среда была способна усиливать проходящую через нее световую волну. В работе [1] была рассмотрена возможность селективного заселения возбужденных состояний атома неона конфигурации  $2p^54s$ :  $2s_2, 2s_3, 2s_4, 2s_5$  (в обозначениях Пашена) вследствие передачи возбуждения при столкновениях метастабильных атомов  $\text{He}(1s2s\ ^3S_1)$  с атомами неона в основном состоянии. Двумя годами позже был продемонстрирован первый газовый лазер [2], активной средой которого была плазма разряда в смеси гелия с неоном и генерация в котором происходила на инфракрасном переходе 1152.3 nm ( $2p^54s, 2s_2 \rightarrow 2p^53p, 2p_4$ ). Верхний лазерный уровень заселялся в ходе неупругих столкновений метастабильных атомов в триплетном состоянии  $\text{He}(1s2s\ ^3S_1)$  с атомами Ne [3]:



Генерация гелий-неонового лазера в видимой области на красной линии 632.8 nm ( $2p^55s, 3s_2 \rightarrow 2p^53p, 2p_4$ ) была получена в работе [4]. Верхний уровень  $3s_2$  заселялся в результате передачи возбуждения от метастабильных атомов гелия в синглетном состоянии  $\text{He}(1s2s\ ^1S_0)$  [3]:



Создание гелий-неонового лазера послужило побудительным мотивом к бурному росту количества теоретических и экспериментальных исследований неупругих процессов в смеси гелия с неоном. Обзор результатов этих исследований можно найти в работе [5]. Несмотря на имеющуюся в литературе обширную информацию о неупругих процессах в гелий-неоновой плазме, далеко не все задачи в данной области оказываются решенными.

Так, в экспериментах [6] по исследованию процессов, формирующих спектры излучения плазмы в гелии с малой примесью неона, была обнаружена ярко выраженная селективность заселения верхнего из группы уровней  $\text{Ne}(2p^54p)$  (рис. 1). Авторы настоящей работы не располагают сведениями о существовании работ, в которых исследовалась бы данная селективность и прежде всего концентрация светового потока переходов  $3p_i \rightarrow 1s_j$  в линии 352.05 nm ( $3p_1 \rightarrow 1s_2$ ) с ростом давления гелия.

В работе [6] эксперименты проводились в диапазоне давлений гелия  $p_{\text{He}} = 0.08 - 20$  Торг, неона  $p_{\text{Ne}} = 0.0005 - 0.003$  Торг. Плазма создавалась низкочастотным (40–160 Hz) импульсным разрядом с двумя диэлектрическими барьерами (конструкция разрядной трубки показана на рис. 2), что устраняло эффект катафоретического разделения смеси He-Ne.

С ростом давления He в линии 352.05 nm ( $3p_1 \rightarrow 1s_2$ ) концентрировалось более 60% всего светового потока, излучаемого во всех переходах с уровнем конфигура-

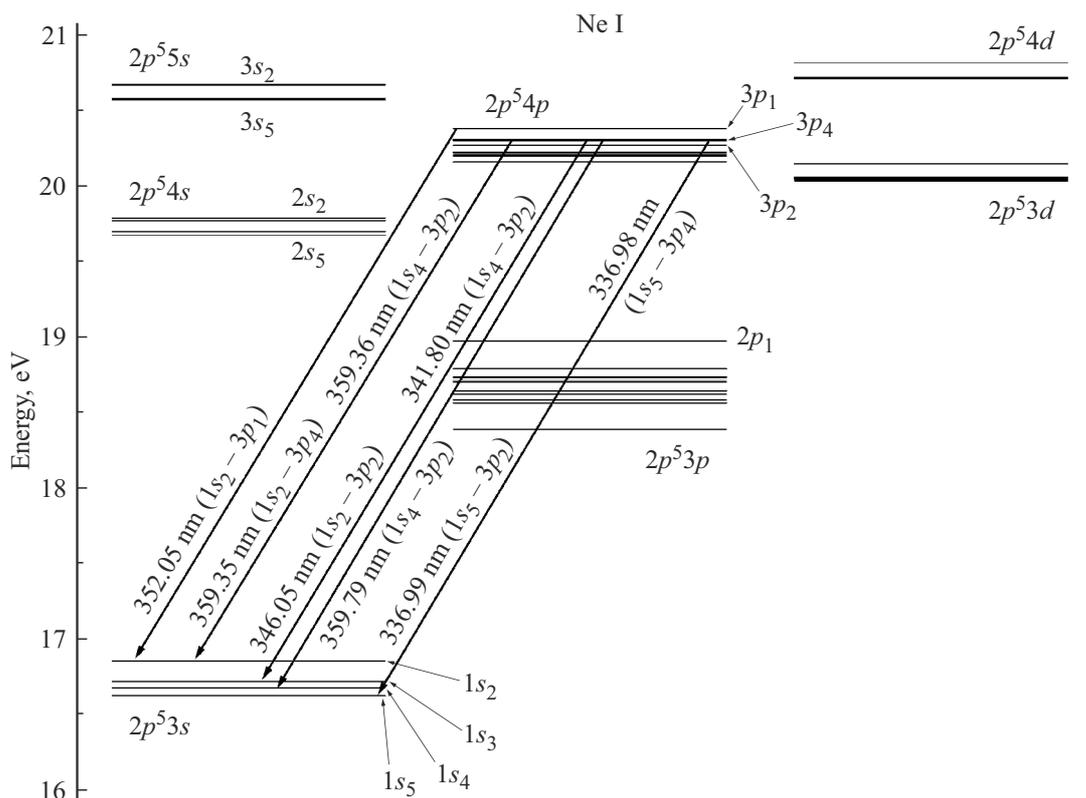


Рис. 1. Система энергетических уровней атома неона.

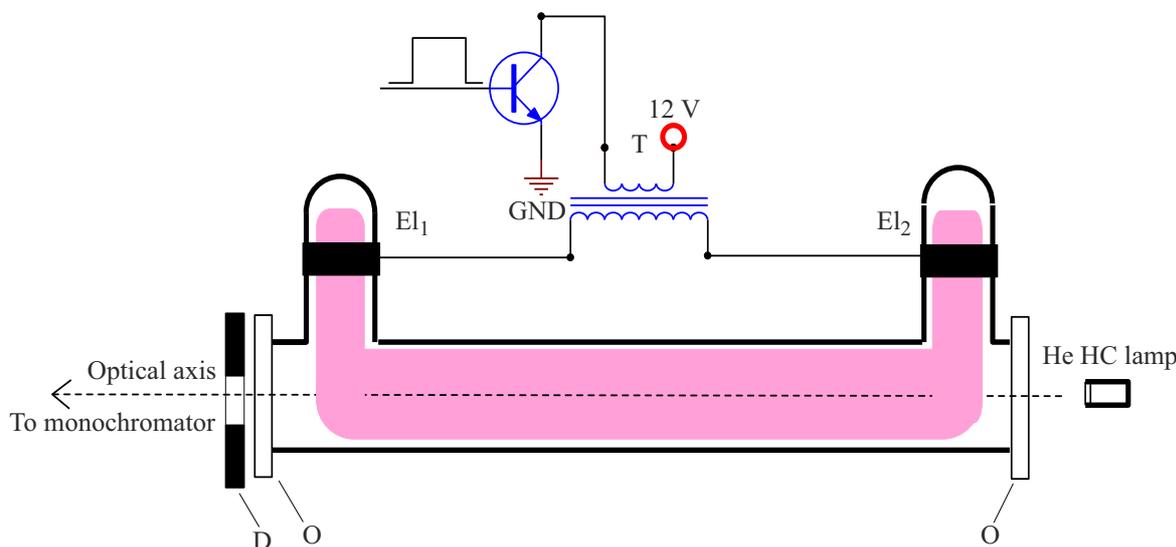


Рис. 2. Разрядная трубка диаметром 3,8 см, длина горизонтальной части разряда 25 см. О — кварцевые окна, D — диафрагма диаметром 5 мм, Т — импульсный трансформатор, El<sub>1</sub>, El<sub>2</sub> — электроды в виде медной фольги на внешней поверхности стеклянной трубки.

ции  $2p^54p$  (рис. 3). В работе [6] была возможность регистрировать излучение плазмы с высоким временным разрешением как в фазе разряда, так и в фазе послесвечения. Концентрация излучения переходов с уровней  $3p_i$  в линии 352,05 нм наблюдалась не только в фазе послесвечения (рис. 3), но и в фазе разряда.

Данный факт на первый взгляд представляется неожиданным, поскольку рост давления и, следовательно, увеличение концентрации атомов и частоты столкновений должны приводить к ускорению релаксации в системе энергетических уровней. Эксперимент, напротив, показывает, что переход к большему давлению гелия

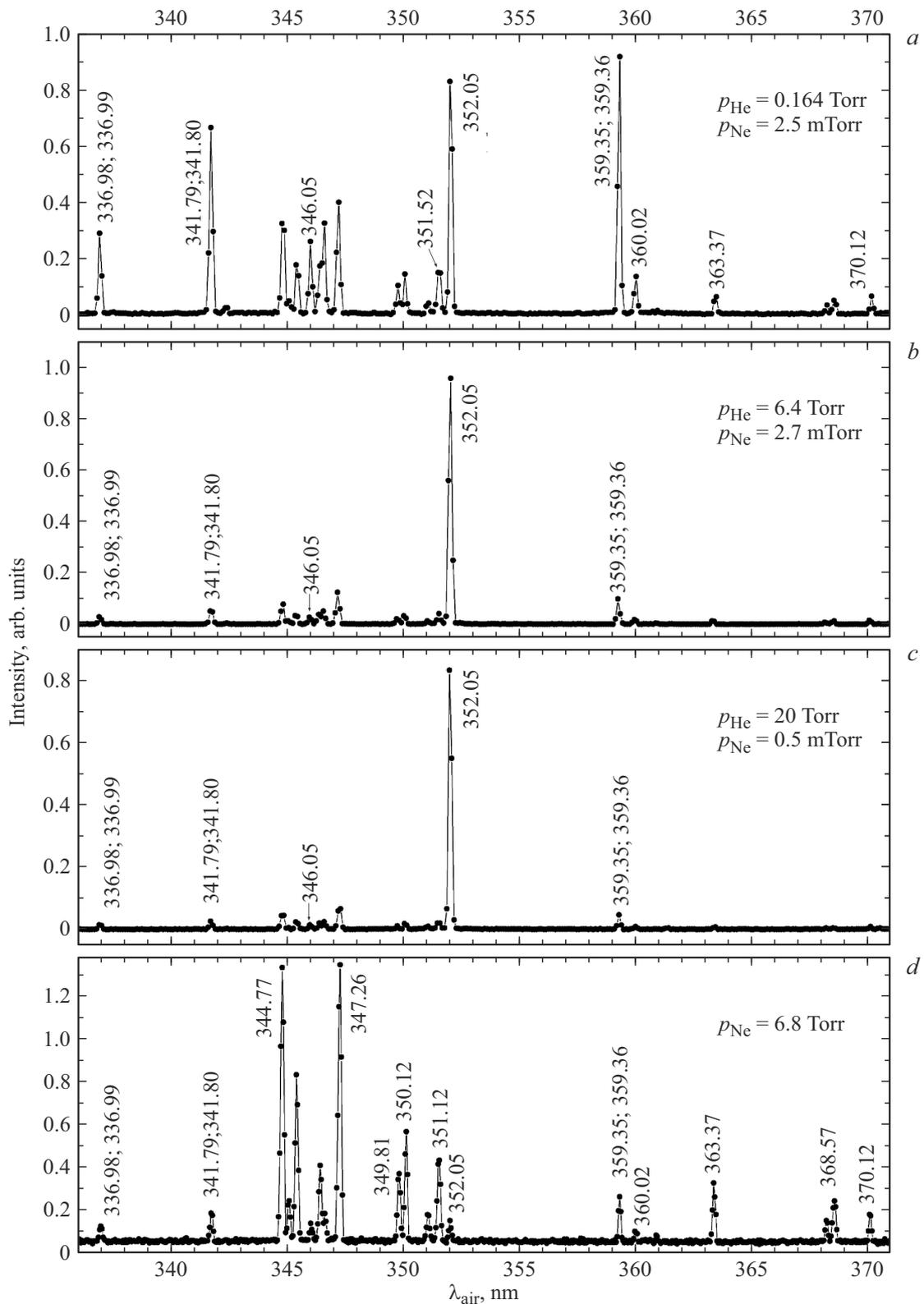
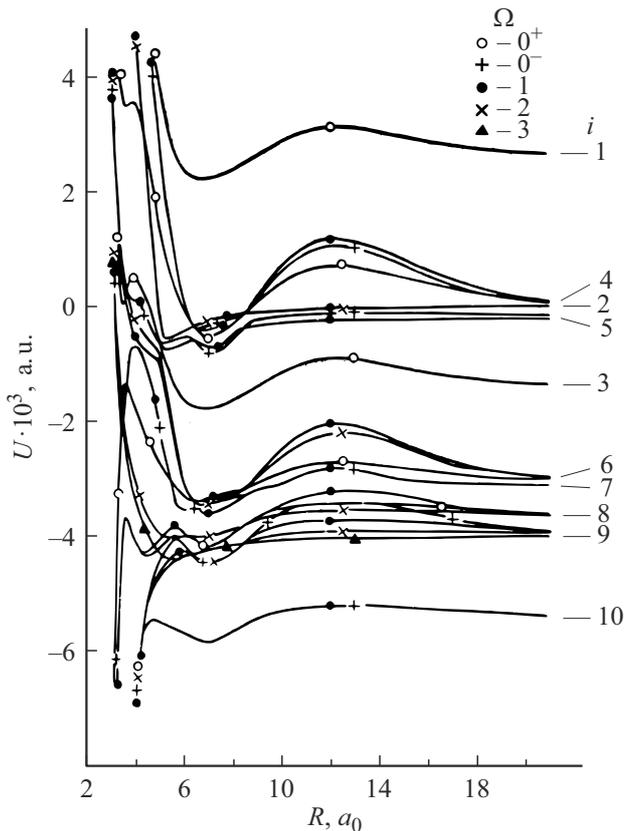


Рис. 3. Спектры послесвечения разряда в смеси He-Ne (a, b, c) и в чистом неоне (d).

приводит к увеличению населенности верхнего уровня  $3p_1$   $2p^54p$ -конфигурации по отношению к населенностям уровней  $3p_i$  ( $i \geq 2$ ), лежащих ниже. Очевидно,

что селективное заселение какого-либо уровня может быть обусловлено либо большим потоком заселения данного уровня, либо более интенсивными процессами



**Рис. 4.** Квазимолекулярные термы системы  $\text{Ne}(2p^5 4p, 3p_i) + \text{He}$  [7]. Энергия выражена в атомных единицах.  $\Omega$  — квантовое число проекции полного момента электронной оболочки на ось молекулы,  $i$  — номер атомного уровня  $3p_i$  в обозначениях Пашена.

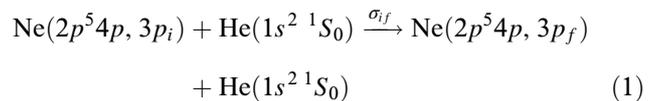
опустошения других уровней, либо обеими этими причинами. Цель данной работы состояла в том, чтобы исследовать влияние второго варианта реализации селективного заселения. Распределение потоков заселения считалось фиксированным и прослеживалось изменение населенностей, обусловленное ростом давления и, следовательно, скорости переходов между возбужденными состояниями конфигурации  $2p^5 4p$  атома неона вследствие столкновений.

### Модель заселения верхних уровней атома Ne конфигурации $2p^5 4p$

Причина менее эффективного девозбуждения состояний  $3p_1$  атома Ne при столкновениях с атомами He, чем девозбуждение состояний  $3p_i$  ( $i \geq 2$ ) той же конфигурации, но с меньшей энергией, может быть связана с особенностями взаимного расположения квазимолекулярных термов системы  $\text{Ne}(2p^5 4p, 3p_i) + \text{He}(1s^2 \ ^1S_0)$  [7]<sup>1</sup> (рис. 4).

<sup>1</sup> В дальнейшем для краткости будем опускать символы  $1s^2 \ ^1S_0$  для основного состояния атома Ne.

Видно, что верхний квазимолекулярный терм, коррелирующий с состоянием  $\text{Ne}(3p_1)$ , удален от остальных термов системы  $\text{Ne}(2p^5 4p, 3p_i) + \text{He}$  ( $i \geq 2$ ). Как указывается в обзоре [5], из картины взаимного расположения квазимолекулярных термов (рис. 4) следует, что вероятность переходов  $3p_1 \rightarrow 3p_i$  ( $i \geq 2$ ) должна быть мала при столкновениях  $\text{Ne}(2p^5 4p, 3p_1)$  с атомами He. В той же работе говорится, что столкновения



значительно более эффективны для переходов между группой уровней  $3p_4, 3p_2, 3p_5$  и группой  $3p_6, 3p_7, 3p_8, 3p_9$ . Это подтверждается результатами эксперимента (табл. 1). Сечения  $\sigma_{if}$  достигают значений  $10^{-16} - 10^{-15} \text{ cm}^2$  для переходов  $i = 2, 4 \rightarrow f = 2, \dots, 10$ .

Здесь уместно упомянуть, что для конфигурации  $2p^5 3p$  точно так же, как для конфигурации  $2p^5 4p$ , малы вероятности переходов с верхнего уровня на нижние  $2p_1 \rightarrow 2p_2, 2p_3, \dots, 2p_{10}$  при тепловых столкновениях  $\text{Ne}(2p^5 3p)$  с атомами He:  $\langle \sigma_{1f}(T \sim 300 \text{ K}) \rangle \ll 10^{-16} \text{ cm}^2$ , поскольку терм системы  $\text{Ne}(2p_1) + \text{He}$  не приближается к термам  $\text{Ne}(2p_i, i \geq 2) + \text{He}$  [5].

Авторы настоящей работы полагают, что причиной увеличения населенности уровня  $3p_1$  относительно населенностей лежащих ниже уровней с ростом давления гелия в гелий-неоновой плазме может быть чрезвычайно малая скорость девозбуждения  $\text{Ne}(3p_1)$  при столкновениях с атомами He, обусловленная особенностями взаимодействия атомов  $\text{Ne}(2p^5 4p)$  и He. Оценки показывают, что при давлениях гелия более 3 Торг скорость столкновительного перемешивания (1) начинает превосходить скорость радиационного распада состояний  $2p^5 4p$  для всех уровней, кроме верхнего  $3p_1$ . По данным [5] (табл. 1) усредненные по максвелловскому распределению сечения  $\langle \sigma_{i1} \rangle$  передачи возбуждения на уровень  $3p_1$  составляют  $10^{-18} \text{ cm}^2$ . Соответствующие им константы скорости могут быть вычислены по формуле

$$k_{q1} = \langle \sigma_{q1} \rangle \sqrt{\frac{8k_B T}{\pi \mu}},$$

где  $q = 2, 4$ ;  $k_B$  — постоянная Больцмана;  $T$  — температура газа;  $\mu$  — приведенная масса сталкивающихся частиц, в данном случае атомов гелия и неона.

Константы скорости  $k_{14}, k_{12}$  обратных переходов  $3p_1 \rightarrow 3p_4, 3p_1 \rightarrow 3p_2$ , пересчитанные по принципу детального равновесия:

$$k_{1q} = k_{q1} \frac{g(3p_q)}{g(3p_1)} \exp \left[ \frac{E(3p_1) - E(3p_q)}{k_B T} \right], \quad (2)$$

остаются на 1–2 порядка меньше констант скорости переходов между нижними уровнями  $3p_i, i = 2, \dots, 10$ .

**Таблица 1.** Усредненные по максвелловскому распределению сечения  $\langle\sigma_{if}(T \sim 350\text{ K})\rangle$  переходов  $3p_i \rightarrow 3p_f$  при столкновениях (1) [5,8],  $\Delta E_{4f}$  — уровень энергии  $3p_f$  относительно уровня  $3p_4$

$f$	Состояние по Пашену	Состояние, $jl$ -связь	$\Delta E_{4f}$ , eV	$\langle\sigma_{if}\rangle, 10^{-16}\text{ cm}^2$	
				$i = 4$	$i = 2$
1	$3p_1$	$(1/2)[1/2]0$	0.0716	$10^{-2}$	$10^{-2}$
4	$3p_4$	$(1/2)[3/2]2$	0	–	$10.6 \pm 1.0$
2	$3p_2$	$(1/2)[1/2]1$	–0.0001	$7.25 \pm 0.45$	–
5	$3p_5$	$(1/2)[3/2]1$	–0.0064	$6.72 \pm 0.45$	$9.45 \pm 0.90$
3	$3p_3$	$(3/2)[1/2]0$	–0.0381	$0.60 \pm 0.03$	$0.77 - 0.06$
6	$3p_6$	$(3/2)[3/2]2$	–0.0831	$1.42 \pm 0.02$	$2.22 \pm 0.20$
7	$3p_7$	$(3/2)[3/2]1$	–0.0863	$0.86 \pm 0.03$	$1.29 \pm 0.10$
8	$3p_8$	$(3/2)[5/2]2$	–0.1004	$1.80 \pm 0.03$	$2.18 \pm 0.20$
9	$3p_9$	$(3/2)[5/2]3$	–0.1089	$1.98 \pm 0.04$	$2.72 \pm 0.25$
10	$3p_{10}$	$(3/2)[1/2]0$	–0.1477	$1.02 \pm 0.05$	$0.72 \pm 0.07$

В формуле (2)  $q = 2$  или  $4$ ,  $g(3p_q)$  и  $g(3p_1)$  — кратности вырождения уровней  $3p_q$  и  $3p_1$  соответственно,  $E(3p_1) - E(3p_q)$  — разность уровней энергии  $3p_1$  и  $3p_q$ .

Для проверки возможности объяснения наблюдаемой селективности заселения уровня  $3p_1$  были проведены расчеты населенностей  $N_{3p_1}$ ,  $N_{3p_4}$ ,  $N_{3p_2}$  трех верхних уровней  $3p_1$ ,  $3p_4$ ,  $3p_2$  конфигурации  $2p^54p$  на основе уравнений баланса:

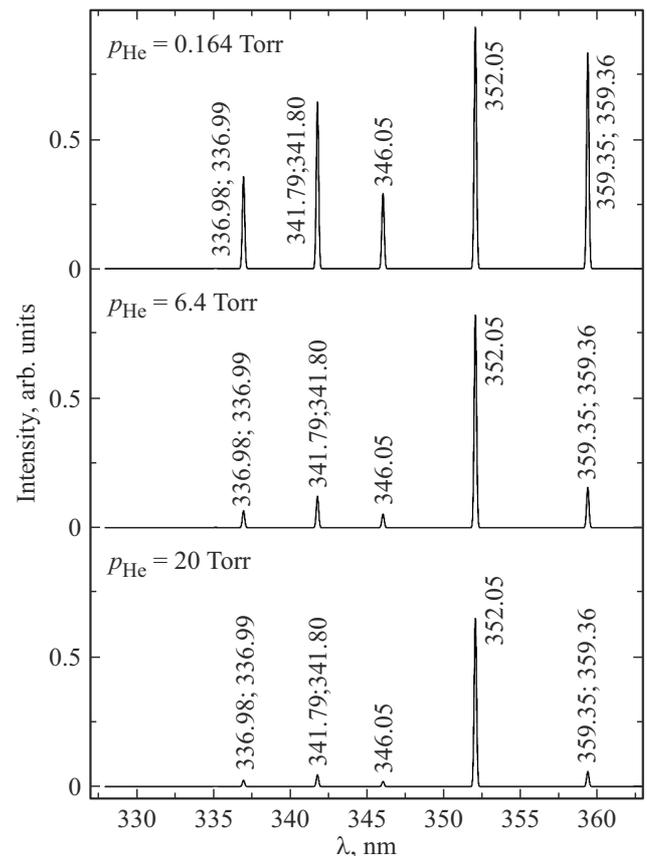
$$\Gamma_{3p_1} = -N_{3p_1} \left\{ \sum_L A_{3p_1 \rightarrow L} + \sum_f [\text{He}] k_{1f} \right\} + N_{3p_4} [\text{He}] k_{41} + N_{3p_2} [\text{He}] k_{21}, \quad (3a)$$

$$\Gamma_{3p_4} = -N_{3p_4} \left\{ \sum_L A_{3p_4 \rightarrow L} + \sum_f [\text{He}] k_{4f} \right\} + N_{3p_1} [\text{He}] k_{14} + N_{3p_2} [\text{He}] k_{24}, \quad (3b)$$

$$\Gamma_{3p_2} = -N_{3p_2} \left\{ \sum_L A_{3p_2 \rightarrow L} + \sum_f [\text{He}] k_{2f} \right\} + N_{3p_1} [\text{He}] k_{12} + N_{3p_4} [\text{He}] k_{42}, \quad (3c)$$

$\Gamma_{3p_i}$  ( $i = 1, 4, 2$ ) — потоки заселения состояний  $3p_1$ ,  $3p_4$ ,  $3p_2$ ;  $A_{3p_i \rightarrow L}$  — вероятности радиационных переходов:  $2p^54p$ ,  $3p_i \rightarrow 2p^53s$ ;  $2p^54p$ ,  $3p_i \rightarrow 2p^54s$ ;  $2p^54p$ ,  $3p_i \rightarrow 2p^53d$  [9];  $k_{if}$  — константы скорости процессов (1)  $3p_i \rightarrow 3p_f$ ,  $[\text{He}]$  — концентрация атомов гелия. Численное моделирование спектров излучения проводилось в три этапа.

1. По зарегистрированному в эксперименте спектру излучения атома неона в области 335–375 nm ( $2p^54p \rightarrow 2p^53s$ ) при давлении гелия  $p_{\text{He}} = 0.164$  Torr и по вероятностям радиационных переходов [9] определялись населенности  $N_{3p_1}$ ,  $N_{3p_4}$ ,  $N_{3p_2}$ .



**Рис. 5.** Результаты численного моделирования спектров излучения в смеси He-Ne.

2. По населенностям  $N_{3p_1}$ ,  $N_{3p_4}$ ,  $N_{3p_2}$  при  $p_{\text{He}} = 0.164$  Torr, вероятностям радиационных

Таблица 2. Результаты вычислений

Уровни	<i>Л</i> -связь	Кратность вырождения $2J + 1$	Энергия относительно уровня $3p_4$ , meV	$N_{3p_i}$ $p_{\text{He}} = 0.164 \text{ Torr}$	$\Gamma_{3p_i}$	$N_{3p_i}$ $p_{\text{He}} = 6.4 \text{ Torr}$	$N_{3p_i}$ $p_{\text{He}} = 20 \text{ Torr}$
$3p_1$	(1/2)[1/2]0	1	71.6	2314	$3.678 \cdot 10^{10}$	2037	1611
$3p_4$	(1/2)[3/2]2	5	0	11601	$10.21 \cdot 10^{10}$	2195	820
$3p_2$	(1/2)[1/2]1	3	-0.1	7312	$7.217 \cdot 10^{10}$	820	492

переходов [5] и сечениям передачи возбуждения (1) [5,9] (табл. 1) на основании уравнений баланса населенностей ( $3a - 3c$ ) определялись потоки  $\Gamma_{3p_1}$ ,  $\Gamma_{3p_4}$ ,  $\Gamma_{3p_2}$  заселения уровней  $3p_1$ ,  $3p_4$ ,  $3p_2$ . Распределение потоков заселения  $\Gamma_{3p_i}$  фиксировалось и использовалось для вычисления потоков заселения уровней  $3p_1$ ,  $3p_4$ ,  $3p_2$  при других давлениях гелия.

3. По полученному для  $p_{\text{He}} = 0.164 \text{ Torr}$  распределению потоков  $\Gamma_{3p_i}$  определялись населенности уровней  $3p_1$ ,  $3p_4$ ,  $3p_2$  и интенсивности спектральных линий, излучаемых при переходах с этих уровней, для других давлений гелия.

В табл. 2 приведены результаты определения потоков заселения  $\Gamma_{3p_i}$  и населенностей  $N_{3p_i}$  в относительной мере. На рис. 5 приведены интенсивности спектральных линий, излучаемых при переходах с уровней  $3p_1$ ,  $3p_4$ ,  $3p_2$ , которые были рассчитаны по населенностям  $N_{3p_1}$ ,  $N_{3p_4}$ ,  $N_{3p_2}$  и вероятностям радиационных переходов  $2p^54p \rightarrow 2p^53s$  [9].

## Результаты и выводы

Сравнение спектров на рис. 3, *a, b, c* и рис. 5 свидетельствует о сходстве картины модификации экспериментального и модельного спектров при увеличении  $p_{\text{He}}$ . По мнению авторов, это является аргументом в пользу предложенного механизма селективного заселения уровня  $3p_1$ .

Рассматриваемый механизм опустошения нижних уровней конфигурации  $2p^54p$ , не затрагивающий в то же время верхний уровень  $3p_1$ , должен реализовываться именно для смеси He-Ne, но не для чистого неона, поскольку существенно связан со спецификой взаимного расположения термов квазимолкул  $\text{Ne}(2p^54p) + \text{He}$ . В чистом неоне не наблюдается и селективное заселение уровня  $3p_1$ . Линия 352.05 nm ничем принципиально не отличается от других линий неоновых спектров в ближней ультрафиолетовой области (рис. 3, *d*).

## Конфликт интересов

Авторы заявляют, что у них нет конфликта интересов.

## Список литературы

- [1] A. Javan. Phys. Rev. Lett., **3**, 87–89 (1959). DOI: 10.1103/PhysRevLett.3.87
- [2] A. Javan, W.R. Bennett, Jr. Phys. Rev. Lett., **6**, 106–110 (1961). DOI: 10.1103/PhysRevLett.6.106
- [3] W.R. Bennett, Jr. Appl. Opt., **1** (S1), 24–61 (1962). DOI: 10.1364/AO.1.S1.000024
- [4] A.D. White, J.D. Rigden. Proc. IRE, **50** (7), 1697 (1962). DOI: 10.1109/JRPROC.1962.288157
- [5] A.Z. Devdariani, A.L. Zagrebin, K. Blagoev. Ann. Phys., **17** (5), 365–470 (1992). DOI: 10.1051/anphys:01992001705036500
- [6] В.А. Иванов, Ю.Э. Скобло. Опт. и спектр., **127** (5), 757 (2019). DOI: 10.21883/OS.2019.11.48510.205-19 [V.A. Ivanov, Yu.E. Skoblo. Opt. Spectrosc., **127** (5), 820–824 (2019). DOI: 10.1134/S0030400X19110110].
- [7] А.Л. Загребин, М.Г. Леднев. Опт. и спектр., **69** (6), 1238–1244 (1990).
- [8] V.M. Baran, G.L. Kononchuk, A.V. Yakunov. Ukr. Phys. J., **28**, 658 (1983).
- [9] M.J. Seaton. J. Phys. B, **31** (24), 5315–5336 (1998). DOI: 10.1088/0953-4075/31/24/013