

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.

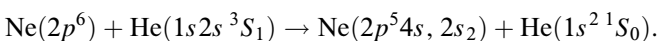
В спектроскопических исследованиях гелий-неоновой плазмы, проведенных ранее, была обнаружена ярко выраженная селективность заселения уровня $3p_1$ (по Пашену), верхнего из группы уровней конфигурации $2p^54p$ атома Ne. По мере роста давления гелия в линии 352.05 nm ($3p_1 \rightarrow 1s_2$) концентрировалось 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.

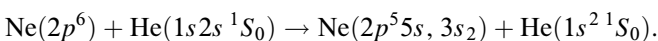
DOI: 10.61011/OS.2024.07.58890.5540-24

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-

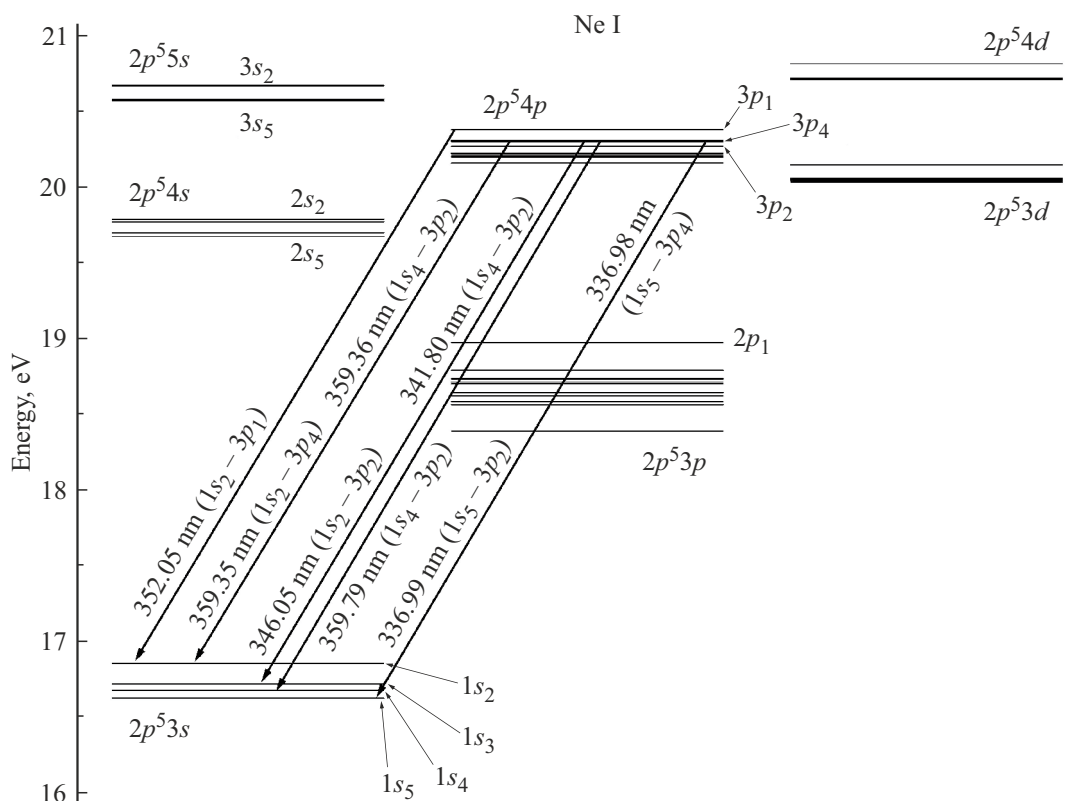


Рис. 1. Система энергетических уровней атома неона.

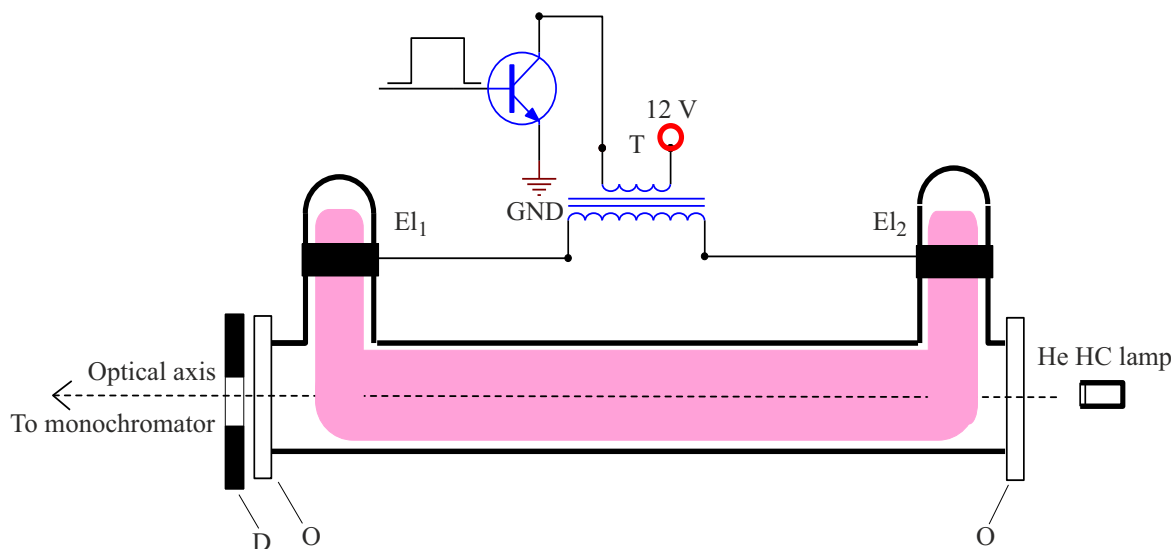


Рис. 2. Разрядная трубка диаметром 3,8 см, длина горизонтальной части разряда 25 см. О — кварцевые окна, D — диафрагма диаметром 5 мм, Т — импульсный трансформатор, El₁, El₂ — электроды в виде медной фольги на внешней поверхности стеклянной трубки.

ции $2p^5 4p$ (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

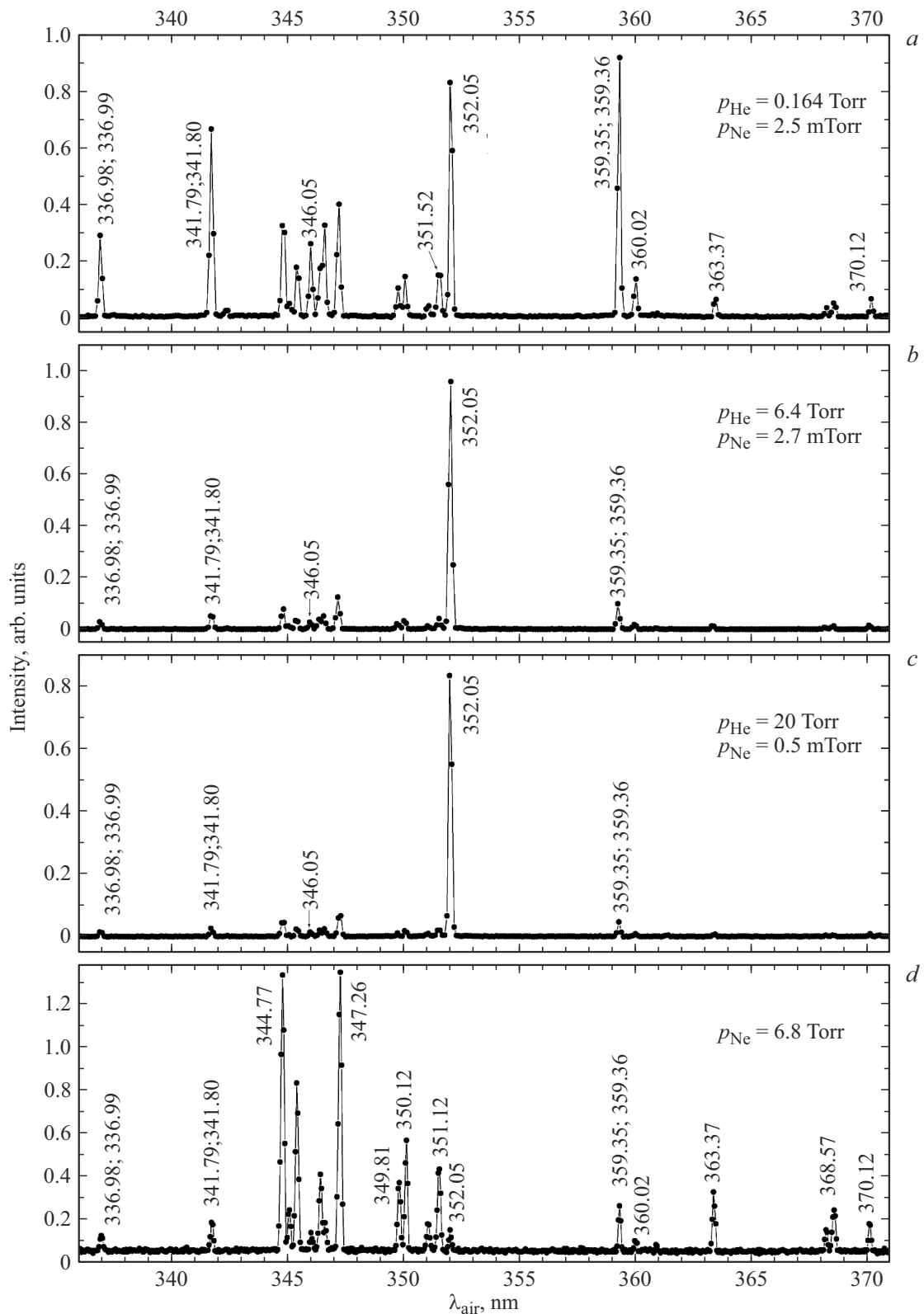


Рис. 3. Спектры послесвечения разряда в смеси He-Ne (a, b, c) и в чистом неоне (d).

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

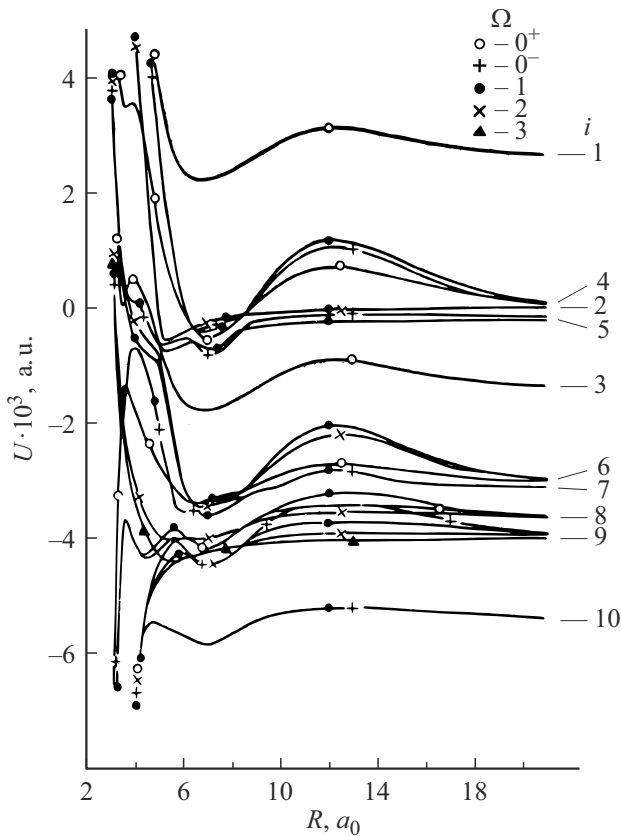


Рис. 4. Квазимолекулярные термы системы $\text{Ne}(2p^5 4p, 3p_i) + \text{He}$ [7]. Энергия выражена в атомных единицах. Ω — квантовое число проекции полного момента электронной оболочки на ось молекулы, i — номер атомного уровня $3p_i$ в обозначениях Пашена.

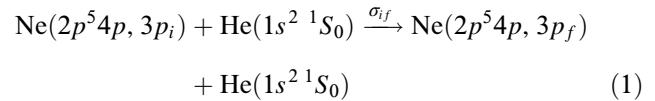
опустошения других уровней, либо обеими этими причинами. Цель данной работы состояла в том, чтобы исследовать влияние второго варианта реализации селективного заселения. Распределение потоков заселения считалось фиксированным и прослеживалось изменение населенностей, обусловленное ростом давления и, 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 Ne, 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]¹ (рис. 4).

¹ 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 Ne. 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 σ_{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 Ne, обусловленная особенностями взаимодействия атомов $\text{Ne}(2p^5 4p)$ и Ne. 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} 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; μ — 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], ΔE_{4f} — уровень энергии $3p_f$ относительно уровня $3p_4$

f	Состояние по Пашену	Состояние, jl -связь	ΔE_{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 ± 1.0
2	$3p_2$	$(1/2)[1/2]1$	−0.0001	7.25 ± 0.45	—
5	$3p_5$	$(1/2)[3/2]1$	−0.0064	6.72 ± 0.45	9.45 ± 0.90
3	$3p_3$	$(3/2)[1/2]0$	−0.0381	0.60 ± 0.03	$0.77 - 0.06$
6	$3p_6$	$(3/2)[3/2]2$	−0.0831	1.42 ± 0.02	2.22 ± 0.20
7	$3p_7$	$(3/2)[3/2]1$	−0.0863	0.86 ± 0.03	1.29 ± 0.10
8	$3p_8$	$(3/2)[5/2]2$	−0.1004	1.80 ± 0.03	2.18 ± 0.20
9	$3p_9$	$(3/2)[5/2]3$	−0.1089	1.98 ± 0.04	2.72 ± 0.25
10	$3p_{10}$	$(3/2)[1/2]0$	−0.1477	1.02 ± 0.05	0.72 ± 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:

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

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

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

Γ_{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} .

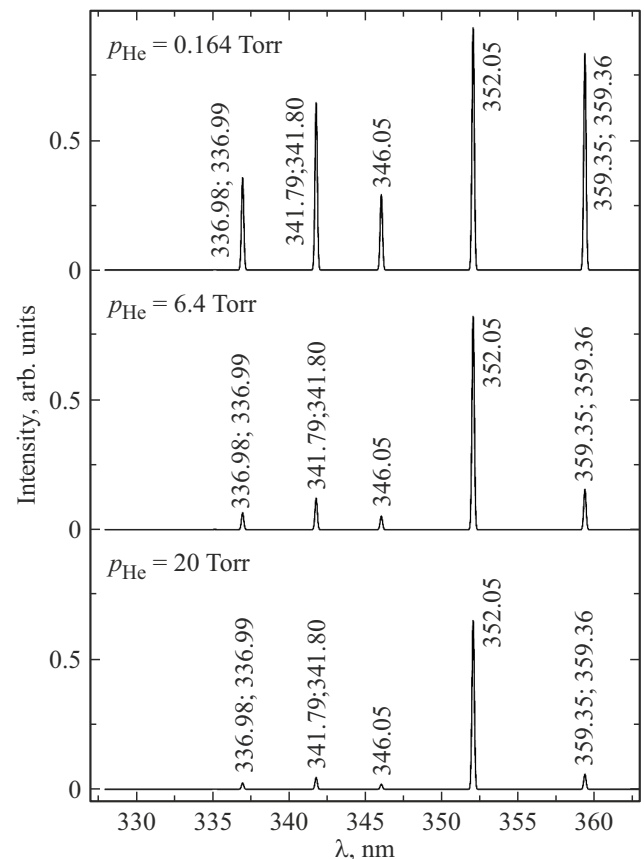


Рис. 5. Результаты численного моделирования спектров излучения в смеси He-Ne.

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>l</i> -связь	Кратность вырождения $2J + 1$	Энергия относительно уровня $3p_4$, meV	N_{3p_i} $p_{\text{He}} = 0.164 \text{ Torr}$	Γ_{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 Γ_{3p_1} , Γ_{3p_4} , Γ_{3p_2} заселения уровней $3p_1$, $3p_4$, $3p_2$. Распределение потоков заселения Γ_{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 Γ_{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 Γ_{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 $2p^5 4p \rightarrow 2p^5 3s$ [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_{He} . По мнению авторов, это является аргументом в пользу предложенного механизма селективного заселения уровня $3p_1$.

Рассматриваемый механизм опустошения нижних уровней конфигурации $2p^5 4p$, 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 $\text{Ne}(2p^5 4p) + \text{He}$. 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