Distribution radiale des atomes excités dans une colonne positive de néon

S. Valignat, J. Leveau, F. Deigat, R. Falgon

► To cite this version:

S. Valignat, J. Leveau, F. Deigat, R. Falgon. Distribution radiale des atomes excités dans une colonne positive de néon. *Revue de Physique Appliquée*, 1977, 12 (7), pp.1007-1011. 10.1051/rphysap:019770012070100700 . jpa-00244269

HAL Id: jpa-00244269

<https://hal.science/jpa-00244269>

Submitted on 1 Jan 1977

HAL is a multi-disciplinary open access archive for the deposit and dissemination of scientific research documents, whether they are published or not. The documents may come from teaching and research institutions in France or abroad, or from public or private research centers.

L'archive ouverte pluridisciplinaire **HAL**, est destinée au dépôt et à la diffusion de documents scientifiques de niveau recherche, publiés ou non, émanant des établissements d'enseignement et de recherche français ou étrangers, des laboratoires publics ou privés.

Classification
Physics Abstracts
6.700

DISTRIBUTION RADIALE DES ATOMES EXCITÉS DANS UNE COLONNE POSITIVE DE NÉON

S. VALIGNAT, J. LEVEAU, F. DEIGAT et R. FALGON

Laboratoire de Spectroscopie et Luminescence, ERA 302
Université Lyon I, 43 boulevard du 11 novembre 1918, 69621 Villeurbanne, France

(Reçu le 22 décembre 1976, accepté le 25 mars 1977)

Résumé. — La distribution radiale des atomes de néon excités dans les états $2p^5 3p$ et $2p^5 3s$ est expérimentalement déterminée dans la colonne positive d'une décharge continue. Le couplage électronique entre ces configurations est étudié pour des pressions variant entre 0,5 et 4 torrs.

Abstract. — The radial distribution of the excited neon atoms in the $2p^5 3p$ and $2p^5 3s$ states has been measured in the positive column of a glow discharge. The pressure dependence of the electronic coupling between these configurations is studied from 0.5 to 4 torr.

Introduction. — Le profil radial de la distribution des atomes de néon excités sur les niveaux $2p^5 3p$ et $2p^5 3s$ (Fig. 1) est étudié dans la colonne positive d'un tube à décharge cylindrique.

FIG. 1. — Diagramme des niveaux d'énergie du néon correspondant aux deux premières configurations.

[Energy level diagram of the two first excited configurations of neon.]

Les résultats concernant les niveaux radiatifs $2p^5 3p$ se déduisent après inversion d'Abel de la mesure de l'intensité de la lumière émise perpendiculairement à l'axe du tube. Une méthode d'absorption est utilisée pour l'étude des niveaux métastables et pseudo-

métastables $2p^5 3s$, un laser accordable servant de source de référence.

Après la description des méthodes expérimentales utilisées nous présenterons l'ensemble des résultats obtenus et étudierons en fonction de la pression le couplage entre les niveaux $2p^5 3p$ et $2p^5 3s$ dû aux collisions électroniques.

1. Méthodes expérimentales. — La décharge est produite dans un tube cylindrique en quartz de rayon $R = 5$ mm à l'aide d'une haute tension continue stabilisée. Le courant de décharge i_c varie entre 2 et 40 mA et la pression p entre 0,5 et 4 torrs. Dans ces conditions la densité des électrons et des atomes excités varie uniquement en fonction de la distance r à l'axe de la décharge. La distribution de la densité électronique suit une fonction de Bessel d'ordre 0 [1] :

$$n_e(r) = n_e(0) J_0\left(2,4 \frac{r}{R}\right) \text{ noté } n_e(0) J_0$$

1.1 ETUDE DES NIVEAUX $2p^5 3p$. — Le dispositif expérimental est indiqué sur la figure 2. Un objectif achromatique diaphragmé envoie sur la fente d'entrée du monochromateur la lumière émise par une tranche de plasma d'épaisseur $\Delta y = 0,2$ mm parallèle à l'axe du tube et située à la distance y de celui-ci. Le montage optique est tel que tous les points de volume ainsi défini soient vus du monochromateur sous le même angle solide. Dans ces conditions le signal lu à la sortie du photomultiplicateur est, pour une raie de fréquence ν , proportionnel à la luminance spectrale $I_\nu(y)$ à la cote y qui s'écrit en fonction de l'émissivité $\varepsilon_\nu(r)$ du plasma :

$$I_\nu(y) = 2 \int_0^{\sqrt{R^2 - y^2}} \varepsilon_\nu(r) dx$$

FIG. 2. — Montage optique pour l'étude des niveaux $2p^5 3p$. Une vis micrométrique permet de déplacer le tube dans la direction de l'axe Oy .

[Optical setup for the $2p^5 3p$ levels study. The displacement in the Oy direction is achieved by mean of a micrometer screw.]

On transforme cette relation à l'aide de l'inversion d'Abel de façon à obtenir $\varepsilon_v(r)$, grandeur proportionnelle à la densité d'atomes émetteurs, en fonction de $I_v(y)$, donnée expérimentale. On obtient alors une intégrale que l'on résout en approximant $I_v(y)$ par un polynôme [3]. Chaque courbe expérimentale est réalisée à partir de 17 pointés (de $y = 0$ à $y = 4,2$ mm de part et d'autre du centre), avec une précision de 2 %. Le choix d'un polynôme de lissage pair d'ordre 6 nous permet d'obtenir des valeurs calculées de $I_v(y)$ qui coïncident avec les valeurs expérimentales dans les limites de l'erreur de mesure. Le programme de calcul est testé avec les fonctions données dans [2] et la précision sur $\varepsilon(r)$ est obtenue en faisant varier chaque donnée $I_v(y)$ de ± 2 %. Les valeurs calculées de $\varepsilon(r)$ varient également de ± 2 %. Dans notre cas, la méthode d'intégration de l'équation d'Abel à partir d'un lissage des données expérimentales n'introduit donc pas d'erreurs supplémentaires la précision sur $\varepsilon(r)$ est déterminée par celle sur $I_v(y)$. A partir des valeurs obtenues nous traçons la courbe normalisée

$$N(r) = \frac{\varepsilon_v(r)}{\varepsilon_v(0)}$$

qui représente pour une raie et des conditions de décharge données le profil radial de la densité d'atomes émetteurs.

1.2 ETUDE DES NIVEAUX $2p^5 3s$. — Les densités d'atomes excités sont mesurées à partir de l'absorption par ces niveaux de la lumière issue d'un laser continu accordable. Le choix du laser comme source de réf-

érence nous permet d'avoir une excellente résolution spatiale en même temps qu'un signal suffisamment intense. Le montage est simple (Fig. 3) et les résultats, nous le verrons, faciles à dépouiller. Le laser est atténué

FIG. 3. — Montage expérimental pour l'étude des niveaux $2p^5 3s$.
[Experimental setup for the $2p^5 3s$ level study.]

de façon à éviter tout phénomène de saturation. L'ouverture du diaphragme d'entrée du monochromateur est de $0,4 \times 0,1$ mm². Une vis micrométrique déplace le tube perpendiculairement au faisceau laser. Le courant dans le tube est modulé à une fréquence basse devant les fréquences de désexcitation des atomes étudiés ($f_0 = 450$ Hz). Le signal lu sur la détection synchrone est proportionnel à $I_0 - I_t$ où I_0 est l'intensité incidente lue à la sortie du photomultiplicateur pendant la demie période où le tube est éteint et I_t l'intensité transmise. Le rapport signal sur bruit est supérieur ou égal à 10 alors que le rapport entre $I_0 - I_t$ et la lumière de fluorescence détectée est de l'ordre de 100.

Si $K_v(r)$ est le coefficient d'absorption du milieu à la distance r pour la fréquence ν , L la longueur de la décharge et E_ν la distribution de fréquence du rayonnement incident, l'absorption $A(r)$ pour l'ensemble de la raie s'écrit :

$$A(r) = \frac{\int E_\nu (1 - e^{-K_v(r)L}) d\nu}{\int E_\nu d\nu}$$

Nous avons mesuré la largeur $\Delta\nu_0$ de la raie issue du laser accordable avec un interféromètre de Michelson. Elle dépend de la puissance de sortie et est de l'ordre de 0,1 Å dans nos conditions d'expérience. Les raies émises par le plasma étudié sont élargies par effet Doppler, le calcul donne une largeur $\Delta\nu_D$ de 0,02 Å à 300 K. On peut donc admettre que l'intensité incidente est constante à l'intérieur d'une raie Doppler et écrire [3] :

$$A(r) = \frac{1}{2\sqrt{\log 2}} \frac{\Delta\nu_D}{\Delta\nu_0} \sqrt{\pi} (K_{\nu_0}(r) L S)$$

avec

$$K_{v_0}(r) L \cdot S = \frac{1}{\sqrt{\pi}} \int_{-\infty}^{+\infty} [1 - \exp -(K_{v_0}(r) L e^{-\omega^2})] d\omega$$

et

$$\omega = \frac{2(v - v_0)}{\Delta v_D} \sqrt{\text{Log } 2}$$

$K_{v_0}(r)$, coefficient d'absorption au centre v_0 de la raie est proportionnel à la densité d'atomes absorbants. $K_{v_0} L S$ est une fonction de $K_{v_0} L$ calculée dans [3], les résultats sont donnés dans le tableau I. Une mesure de $A(r)$ nous permet donc de connaître $K_{v_0}(r) L$.

TABLEAU I

$K_0 L$	$K_0 L S$	$K_0 L$	$K_0 L S$
0	1,000	1,2	0,820
0,1	0,964	1,4	0,906
0,15	0,948	1,6	0,985
0,20	0,933	1,8	1,050
0,25	0,917	2,0	1,112
0,30	0,902	2,2	1,170
0,35	0,887	2,4	1,218
0,40	0,872	2,6	1,267
0,45	0,859	2,8	1,311
0,50	0,844	3,0	1,350
0,55	0,831	3,2	1,385
0,60	0,818	3,4	1,415
0,65	0,806	4,0	1,488
0,70	0,793	4,4	1,530
0,75	0,780	5	1,580
0,80	0,768	6	1,656
0,85	0,757	7	1,720
0,90	0,745	8	1,778
0,95	0,734	9	1,820
1,00	0,725	10	1,850

Nous traçons ensuite la courbe normalisée

$$M(r) = \frac{K_{v_0}(r) L}{K_{v_0}(0) L}$$

qui représente pour une raie et des conditions de décharge données le profil radial de la densité d'atomes absorbants.

2. Résultats et discussion. — 2.1. La forme des fonctions de distributions radiales $N(r)$ dépend des mécanismes d'excitation des niveaux $2p^5 3p$. On sait en effet [4] que ceux-ci sont peuplés par collisions électroniques, sur les atomes dans l'état fondamental d'une part (processus I), et sur les atomes métastables de la configuration $2p^5 3s$ d'autre part (processus II). Leur désexcitation est radiative (probabilité A d'émission spontanée). A l'équilibre la densité de population $n(r)$ obéit à l'équation :

$$n(r) = \frac{1}{A} [N_0 n_e(r) < \sigma_d v > + m(r) n_e(r) < \sigma_s v >]$$

N_0 densité des atomes à l'état fondamental supposée uniforme dans la section droite du tube ; σ_d, σ_s , sections efficaces d'excitation directe à partir du fondamental et à partir des métastables (stepwise) ; v , vitesse des électrons ; $m(r)$ densité d'atomes métastables.

La fonction $N(r)$ peut alors s'écrire :

$$N(r) = \frac{n(r)}{n(0)} = a J_0 + b M(r) J_0$$

où

$$a = \frac{N_0 n_e(0) < \sigma_d v >}{A n(0)}$$

et

$$b = \frac{m(0) n_e(0) < \sigma_s v >}{A n(0)}$$

ne dépendent que de la pression et du courant de décharge. Le rapport :

$$\frac{a}{b} = \frac{N_0 < \sigma_d v >}{m(0) < \sigma_s v >}$$

mesure l'importance du processus I par rapport au processus II.

2.2 NIVEAUX $2p^5 3p$. — Pour tracer le profil $N(r)$ correspondant à chacun de ces niveaux nous avons choisi les raies mentionnées sur la figure 1 qui sont les moins autoabsorbées. Les résultats expérimentaux montrent que :

— la forme de la fonction $N(r)$ dépend très peu du niveau considéré ainsi que de l'intensité du courant de décharge ;

— la pression joue un rôle prépondérant (Fig. 4) : une augmentation de pression entraîne une contraction de la courbe vers l'axe de symétrie.

FIG. 4. — Profil radial de la densité d'atomes excités sur les niveaux $2p^5 3p$ pour différentes valeurs de la pression.

[Radial profile of the $2p^5 3p$ excited atom density for different values of the pressure.]

2.3 NIVEAUX $2p^5 3s$. — Notre étude a porté sur les niveaux $1s_4$ et $1s_5$. Les niveaux $1s_3$ et $1s_5$ étant tous

deux métastables les distributions radiales de leurs populations doivent être les mêmes ce qui a été expérimentalement vérifié à 2 torrs. Quant au niveau $1s_2$ sa population est toujours bien inférieure à celle des autres niveaux $2p^5 3s$ ce qui rend les mesures très imprécises dès que l'on s'éloigne de l'axe du tube. Nous admettons donc que son comportement est le même que celui de $1s_4$ étant donné qu'il s'agit de deux niveaux radiatifs.

Nous avons mesuré les absorptions des raies 6 074 Å ($1s_4$) et 6 143 Å ($1s_5$). Nous constatons (Fig. 5) que les

FIG. 5. — Profil radial de la densité d'atomes excités sur les niveaux $1s_4$ et $1s_5$.

[Radial profile of the $1s_4$ and $1s_5$ excited atom density.]

répartitions radiales sont très différentes suivant qu'il s'agit d'un niveau métastable ($1s_5$) ou d'un niveau radiatif ($1s_4$). Cette différence est d'autant plus grande que la pression est plus faible, pour une pression de 4 torrs, par contre, les distributions sont identiques. De plus la fonction $M(r)$, comme $N(r)$ varie peu en fonction du courant de décharge. Nous notons également que pour $p \leq 1$ torr la densité d'atomes métastables ($1s_5$) est encore très importante près des parois du tube. Ce phénomène a déjà été signalé [5], [6] ; il permet de penser que la relaxation des métastables lors des collisions sur les parois n'est pas totale.

2.4 COUPLAGE ENTRE NIVEAUX. — Nous avons comparé, pour une intensité donnée du courant de décharge ($i_c = 10$ mA) et différentes pressions, la fonction $N(r)$ aux fonctions J_0 , $J_0 M(r)$ et $J_0 M'(r)$. $N(r)$ représente le profil du niveau $2p_2$ (raie 6 030 Å), $M(r)$

FIG. 6. — Comparaison du profil radial de la densité électronique (J_0), de la densité d'atomes excités ($N(r)$) avec les courbes $J_0 M(r)$ (courbe 1) et $J_0 M'(r)$ (courbe 2).

[Comparison of the radial profile of the electronic (J_0) and excited atom ($N(r)$) density with $J_0 M(r)$ (1) and $J_0 M'(r)$ (2).]

celui du niveau $1s_5$ seul et $M'(r)$ celui du niveau $1s_4$ seul. Nous pouvons constater sur la figure 6 que :

— A 0,5 torr la courbe $N(r)$ reste comprise entre J_0 et $J_0 M(r)$. On peut donc dire que l'excitation des niveaux $2p^5 3p$ fait intervenir les processus I et II (§ 2.1) et que ce dernier a lieu principalement à partir du niveau $1s_5$.

— Pour $1 \leq p < 4$ torr $N(r)$ est constamment située en dessous de $J_0 M(r)$. Ceci montre que le processus I est devenu négligeable devant le processus II. Le fait que les deux courbes ne coïncident pas prouve que l'excitation des niveaux $2p^5 3s$ se fait non seulement à partir des niveaux métastables ($1s_5$, $1s_3$) mais également à partir des niveaux pseudométastables ($1s_4$, $1s_2$). Des mesures antérieures faites au laboratoire ont d'ailleurs montré que la désexcitation du niveau $1s_4$ par collisions électroniques est au moins aussi importante que celle du niveau $1s_5$ [7].

— A 4 torrs lorsque les distributions $M(r)$ et $M'(r)$ sont confondues $N(r)$ est identique à la courbe $J_0 M(r)$.

Nous avons porté sur un graphique $N(r)$ à 4 torrs et $\frac{N(r)}{J_0}$ à 0,5 torr en fonction respectivement de $J_0 M(r)$ et de $M(r)$. Nous constatons sur la figure 7 que ce sont

FIG. 7. — Couplage électronique entre les niveaux $2p^5 3p$ (profil radial $N(r)$) et les niveaux $2p^5 3s$ (profil radial $M(r)$). [Electronic coupling between the $2p^5 3p$ ($N(r)$) and $2p^5 3s$ ($M(r)$) levels.]

bien des droites (§ 2.1). La première met en évidence l'exclusivité du processus II à 4 torrs, la deuxième de pente $b = 0,6$ et d'ordonnée à l'origine $a = 0,4$ montre que l'excitation électronique est, à 0,5 torr, une fois et demie plus importante à partir des métastables qu'à partir des atomes à l'état fondamental.

Dans le tableau II sont reportés les résultats trouvés pour les concentrations $m(0)$ d'atomes excités sur l'ensemble des niveaux $2p_5 3s$ pour un courant de décharge de 10 mA. Pour évaluer le terme $\frac{\langle \sigma_d v \rangle}{\langle \sigma_s v \rangle}$ on fait les hypothèses suivantes :

$$\begin{aligned} \sigma_d &= 0 \text{ pour } E < E_n, & \sigma_d &= \sigma_d^{\text{Max}} \text{ pour } E > E_n \\ \sigma_s &= 0 \text{ pour } E < E_{mn}, & \sigma_s &= \sigma_s^{\text{Max}} \text{ pour } E > E_{mn} \end{aligned}$$

où E_n et E_{mn} représentent les énergies des seuils de réactions.

TABLEAU II

p (torr)	t_e (eV)	$\frac{< \sigma_d v >}{< \sigma_s v >}$	$m(o) \times 10^{-11} \text{ cm}^{-3}$	$N_0/m(o)$	a/b
—	—	—	—	—	—
0,5	6	$0,38 \times 10^{-4}$	8,2	2×10^4	0,76
1	4	$0,11 \times 10^{-4}$	14	$2,3 \times 10^4$	0,25
2	2,8	$0,02 \times 10^{-4}$	28	$2,3 \times 10^4$	0,04
4	2,6	$0,01 \times 10^{-4}$	23	$5,7 \times 10^4$	0,06

— La fonction de distribution électronique est maxwellienne. La température T_e est donnée par la courbe universelle $T_e/V_i = f(C_{Ne} pr)$.

Les valeurs des sections efficaces d'excitation du niveau $2p_2$, choisi comme exemple, sont indiquées par Frish et Revald [8] :

$$\sigma_d^{\text{Max}} = 1,4 \times 10^{-19} \text{ cm}^2$$

$$\sigma_s^{\text{Max}} = 6,5 \times 10^{-16} \text{ cm}^2.$$

Nous voyons alors que la valeur calculée du rapport a/b à 0,5 torr est en bon accord avec le résultat expérimental : $a/b = 0,66$.

Lorsqu'on passe de 0,5 à 2 torrs le rapport a/b décroît d'un facteur 20. A 4 torrs il est de 6×10^{-2} ce qui est bien confirmé expérimentalement puisque l'on trouve que, dans ces conditions, l'excitation directe est négligeable devant l'excitation à partir des métastables.

Nous cherchons actuellement à déterminer la température et la fonction de distribution électroniques ce qui nous permettra de préciser ces résultats et de faire une étude comparative des mécanismes de peuplement des différents niveaux $2p_5 3p$.

3. Conclusion. — Nous avons montré, à partir de l'étude des distributions radiales des atomes excités de néon, que le mécanisme d'excitation directe devient négligeable au-delà de 1 torr. Le mécanisme prépondérant fait intervenir non seulement les niveaux métastables mais aussi les niveaux pseudométastables. De plus, la valeur du courant de décharge a peu d'influence sur la forme des courbes obtenues.

Nous poursuivons actuellement ce travail de façon à obtenir des résultats quantitatifs sur les différents processus couplant chacun des dix niveaux $2p^5 3s$.

Bibliographie

- [1] DELCROIX, J. L., *Physique des Plasmas* (Dunod, Paris) 1966, tome 2, chapitre 16.
- [2] BOCKASTEN, K. J., *Opt. Soc. Am.* **51** (1961) 943.
- [3] MITCHELL, A. C. C. and ZEMANSKY, M. W., *Resonance Radiation and Excited Atoms* (The Macmillan Company, New York) 1934.
- [4] BETEROV, I. M. et CHEBOTAIEV, V. P., *Opt. Spectros.* **23** (1967) 467.
- [5] SADEGHI, N. et PEBAY-PEYROULA, J. C., *J. Physique* **35** (1974) 353.
- [6] LISITSYN, V. N., PROVOROV, A. S. and CHEBOTAIEV, V. P., *Opt. Spectros.* **29** (1970) 119.
- [7] LEVEAU, J., VALIGNAT, S. et DEIGAT, F., *Third Europhysics Study Conference of Atomic and Molecular Physics of Ionised Gases* (Bratislava, août 1976), p. 97.
- [8] FRISH, S. E. and REVALD, V. F., *Opt Spectros.* **15** (1963) 395