HAL
open science

Paramètres de plasma de la colonne positive des lasers hélium-vapeurs métalliques. I. Formule semi-empirique pour la section efficace électronique d'ionisation d'atomes de zinc et de cadmium

T. Ta Van

▶ **To cite this version:**

T. Ta Van. Paramètres de plasma de la colonne positive des lasers hélium-vapeurs métalliques. I. Formule semi-empirique pour la section efficace électronique d'ionisation d'atomes de zinc et de cadmium. Revue de Physique Appliquée, 1984, 19 (5), pp.403-408. 10.1051/rphysap:01984001905040300 . jpa-00245209

HAL Id: jpa-00245209
https://hal.science/jpa-00245209

Submitted on 4 Feb 2008

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.

Revue Phys. Appl. **19** (1984) 403-408

Classification
Physics Abstracts
42.55H — 52.20F

Paramètres de plasma de la colonne positive des lasers hélium-vapeurs métalliques. I. Formule semi-empirique pour la section efficace électronique d'ionisation d'atomes de zinc et de cadmium

T. Ta Van

Laboratoire de Photophysique Moléculaire du CNRS (*), Bâtiment 213,
Université de Paris-Sud, 91405 Orsay Cedex, France

(*Reçu le 16 novembre 1983, révisé le 31 janvier 1984, accepté le 3 février 1984*)

Résumé. — Dans cet article, nous présentons une formule analytique semi-empirique à deux paramètres libres pour la section efficace électronique d'ionisation directe de l'état fondamental des atomes de zinc et de cadmium. Les résultats obtenus se trouvent dans la limite des erreurs des données expérimentales. Les autres processus d'ionisation (ionisation multiple, autoionisation) ont été négligés.

Abstract. — In this paper, a semi-empirical analytical formula with two free parameters is given for the representation the ionisation cross-section by electron-impact for the zinc and cadmium atoms from the ground state. The results are within the error bars of the experimental results. Other ionization processes (multiple ionisation, autoionization) are not taken into account.

1. Introduction.

Les mécanismes d'excitation dans les colonnes positives des lasers He-Zn^+ et He-Cd^+ ont été étudiés en détail par les méthodes spectroscopiques [1-3] et les méthodes à « sondes doubles » [4-7]. On a montré que le processus dominant d'excitation des niveaux laser supérieurs est le processus de collision Penning entre les atomes métastables de l'hélium et les atomes métalliques dans l'état fondamental, mais les autres processus d'excitation comme le processus d'excitation par des collisions électroniques n'ont pas été étudiés en détail. Par ailleurs, les mécanismes d'excitation des niveaux laser inférieurs qui peuvent être dominants dans le mécanisme de saturation de la puissance du laser n'ont pas été beaucoup étudiés.

Dans un travail antérieur [8] nous avons établi qualitativement les paramètres de la colonne positive de la décharge He-Zn et nous avons montré que ces paramètres sont influencés tant par les processus de collision Penning que par les processus de collisions électroniques dans la gamme de pression où l'effet laser a lieu.

Afin d'étudier ces mécanismes quantitativement, il faut bien connaître les paramètres de plasma d'une colonne positive de ce type de décharge : densité et température électronique et les données importantes : probabilités de transition, sections efficaces de collisions de différentes sortes etc....

L'une de ces données est la section efficace d'ionisation par collisions électroniques des atomes du mélange considéré. Malheureusement, pour le zinc et le cadmium, cette section n'est connue expérimentalement qu'en quelques points isolés [9-10]. De plus, les résultats théoriques existants [11-15] ne sont pas satisfaisants pour la gamme des faibles énergies de la colonne positive de la décharge He-zinc et He-cadmium. Dans cet article nous présentons une formule analytique semi-empirique pour la section efficace électronique d'ionisation d'atomes de zinc et de cadmium à partir de l'état fondamental en nous basant sur l'expression de Bethe [16] et les résultats expérimentaux de Penkin et Redko [10], Pottie [9] et Hickam [18].

(*) Laboratoire associé à l'Université de Paris-Sud.

Article published online by EDP Sciences and available at http://dx.doi.org/10.1051/rphysap:01984001905040300

2. Méthode.

Soit un atome subissant une collision avec un électron énergétique. D'une façon générale, quand l'énergie cinétique de l'électron projectile E est plus grande que l'énergie de liaison E_k des électrons atomiques de la sous-couche k, les N_k électrons équivalents de cette sous-couche contribuent également à la section efficace Q_k de la sous-couche c'est-à-dire :

$$Q_k = N_k \, Q_{ek} \tag{1}$$

où Q_{ek} est la section efficace d'ionisation d'un électron de la sous-couche k. Si l'atome a N sous-couches électroniques, alors la section efficace totale d'ionisation de l'atome Q_T s'écrit :

$$Q_T = \sum_{k=1}^{N} N_k \, Q_{ek} \, . \tag{2}$$

Ainsi, le problème est réduit à la détermination de la section efficace d'ionisation individuelle Q_{ek}. Ce type de problème a fait l'objet de nombreuses études tant expérimentales que théoriques. Dans le cas du zinc et du cadmium, parmi de nombreux résultats, nous prenons en considération les calculs de Bethe [16] et de Rudge [17] qui nous suggèrent la formule suivante pour l'ionisation directe de l'état fondamental :

$$Q_k(E) = f_k \, N_k \frac{\ln (E/E_k)}{E . E_k} ; \quad E \gg E_k \, . \tag{3}$$

Pour $E \gg E_k$, f_k est une constante déterminée expérimentalement. Cette expression est intéressante pour les raisons suivantes :

— elle a un paramètre ajustable f_k et sa variation dépend explicitement de l'énergie de l'électron projectile ce qui évite un calcul laborieux ;

— il existe une valeur expérimentale de la section efficace absolue d'ionisation de zinc et cadmium mesurée par Pottie [9] dans la région des grandes énergies dans laquelle la formule (3) est valable ;

— l'équation (3) peut s'écrire sous la forme :

$$Q_k = \frac{f_k \, N_k}{E_k^2} \cdot \frac{\ln X_k}{X_k} ; \quad X_k \geqslant 1 \tag{4}$$

où $X_k = E/E_k$. Si on connaît les potentiels d'ionisation des sous-couches électroniques on peut calculer la section efficace absolue.

D'une façon générale, dans la colonne positive des décharges électriques, les électrons ont des énergies modérées. Dans cette gamme d'énergie f_k doit être une fonction de l'énergie de l'électron projectile, parce que l'approximation Bethe-Born donne des valeurs incorrectes [16]. La forme de cette fonction $f_k(E)$ dans le contexte semi-empirique est arbitraire. Lotz [15] a choisi pour f_k une fonction de la forme :

$$f_k = a_k . [1 - b_k \, e^{-c_k(E/E_k - 1)}] \, . \tag{5}$$

Pour le cas du zinc et du cadmium, nous soumettons le choix de la fonction f_k aux conditions suivantes :

— Près du seuil d'ionisation, c'est-à-dire $E \simeq E_1$ (où E_1 est le potentiel d'ionisation de l'atome) la section totale se réduit à la forme :

$$Q_T \propto E - E_1 \, . \tag{6}$$

Cette condition est strictement obligatoire parce que les courbes de la probabilité d'ionisation du zinc et du cadmium augmentent linéairement avec l'énergie de l'électron projectile dans une région étendue (environ 1,3 eV pour zinc et 3 eV pour cadmium).

— On choisit la fonction $f_k(E)$ de telle sorte que la loi de variation de l'expression (3) suive la loi de variation de la section d'ionisation calculée par M. Gryzinski [20]. En effet, la théorie classique de Grysinski a été appliquée avec succès dans plusieurs cas [21-25] surtout dans la gamme des faibles énergies.

En tenant compte de ces conditions nous choisirons la formule suivante avec deux paramètres libres :

$$f_k = a_k \left(1 - \frac{b_k}{X_k} \right) \; b_k \leqslant 1 \tag{7}$$

où a_k et b_k sont des constantes. Ainsi, la section efficace totale d'ionisation directe de l'état fondamental d'un atome s'écrit :

$$Q_T = \sum_{k=1}^{N} a_k \frac{N_k}{E_k^2} \frac{\ln X_k}{X_k} \left(1 - \frac{b_k}{X_k} \right) ; \quad X_k \geqslant 1 \tag{8}$$

où $k = 1$ est associé à la sous-couche externe, $k = 2$ est associé à la sous-couche interne précédente etc...

Près du seuil d'ionisation, la formule (8) se réduit à la forme :

$$Q_T \simeq \frac{a_1 \, N_1 (1 - b_1)}{E_1^3} (E - E_1) \propto E - E_1 \tag{9}$$

et pour $E \gg E_k$, la formule (8) devient :

$$Q_T = \sum_{k=1}^{N} \frac{a_k \, N_k}{E_k} \frac{\ln E/E_k}{E} \, . \tag{10}$$

On observe que, le maximum de la fonction Q_k se trouve dans la région $2{,}7 < X_M < 4{,}2$ (Gryzinski : $X_M \simeq 3{,}7$).

Les coefficients libres a_k et b_k sont déterminés par la méthode d'approximation de moindres carrés à partir des valeurs expérimentalement connues.

3. Résultats et discussions.

3.1 Les données. — Les potentiels d'ionisation E_1 pour le zinc et le cadmium sont donnés par Moore [27]. Les énergies de liaison des électrons des sous-couches électroniques internes sont données par Strominger [28].

Les données expérimentales pour la section efficace d'ionisation du zinc et du cadmium proviennent de trois sources :

— les deux courbes de la probabilité du zinc et du cadmium tracées par Hickam [18, 19] au seuil d'ionisation. Les courbes de Hickam sont tracées en unités arbitraires. Afin de les transformer en cm^2, nous avons employé le résultat estimé par Penkin et Redko [10] au seuil d'ionisation du cadmium :

$$Q_T = 2 \times 10^{-17}(E - E_1) \quad [cm^2] \qquad (11)$$

et la relation entre section efficace d'ionisation et la probabilité d'ionisation P_i [29] :

$$Q_T^i = 0{,}283 \times 10^{-16} P_i . \qquad (12)$$

Dans les conditions expérimentales de Penkin et Redko (décharge en cadmium pur) deux processus d'ionisation sont en compétition : L'ionisation en deux étapes et l'ionisation directe qui est dominante aux faibles valeurs du courant. L'étude de la variation du rapport de l'ionisation en deux étapes à l'ionisation directe en fonction du courant a permis à ces auteurs de déterminer l'approximation de la section efficace d'ionisation directe au voisinage du seuil donnée par la relation (11).

— Dans la gamme des grandes énergies, nous utilisons les résultats de Pottie [9] qui à $E = 50$ eV donne :

$$Q_T^{Zn} = (5{,}03 \pm 0{,}45).10^{-16}\ cm^2 ,$$
$$Q_T^{Cd} = (8{,}54 \pm 0{,}33).10^{-16}\ cm^2$$

et qui indique que ces valeurs changent très peu dans la gamme d'énergie comprise entre 50-75 eV.

3.2 Les coefficients a_k, b_k. — Les résultats du calcul des coefficients a_k et b_k sont rassemblés dans le tableau I. En réalité, les calculs ont été effectués pour toutes les sous-couches électroniques des atomes de zinc et de cadmium, mais l'approximation $N = 3$ est suffisante.

3.3 Sections efficaces d'ionisation. — Dans les figures 1 et 2 nous présentons les résultats obtenus avec l'expression (8) pour le cas du zinc et du cadmium dans la région proche du seuil d'ionisation. Les résultats sont comparés avec les courbes tracées par Hickam.

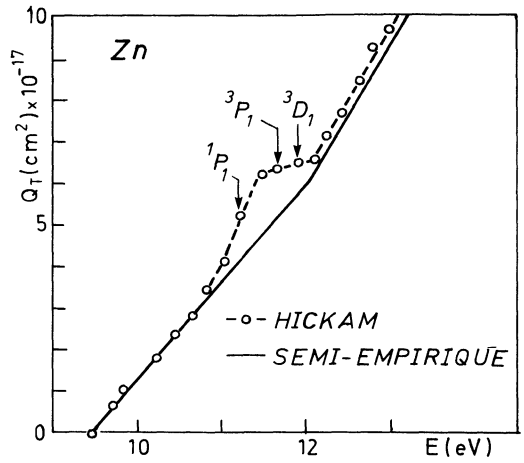

Fig. 1. — Section efficace électronique d'ionisation au seuil pour l'atome de zinc.

[Electron-impact ionization cross-section at the threshold for the zinc atom.]

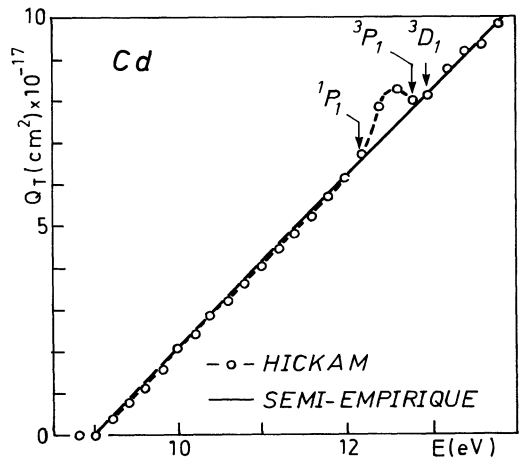

Fig. 2. — Section efficace électronique d'ionisation au seuil pour l'atome de cadmium.

[Electron impact ionization cross-section at the threshold for the cadmium atom.]

Tableau I. — *Valeurs des coefficients a_k (en unités 10^{-14} cm² × eV²) et b_k de la fonction f_k donnée par l'équation* (8), *et des potentiels E_k (en* eV).

[Values of the coefficients a_k (in unity 10^{-14} cm² (eV)²) and b_k of the function f_k given by (8), and of the potentials E_k (in eV).]

ELEMENT	CONFIGURATION	N_1	N_2	N_3	E_1	E_2	E_3	a_1	a_2	a_3	b_1	b_2	b_3
Zn	$3p^6\ 3d^{10}\ 4s^2$	2	10	6	9,4	12	91	3,1	1,6	4	0,72	0,9	0,8
Cd	$4p^6\ 4d^{10}\ 5s^2$	2	10	6	9	12	61	2,6	3,72	4	0,72	0,9	0,8

Dans les tableaux II et III nous présentons nos résultats pour une large gamme d'énergie ($E < 100$ eV). Les résultats sont comparés aux résultats expérimentaux de Pottie [9] et aux résultats théoriques.

Tableau II. — *Valeurs de la section efficace d'ionisation pour le zinc (en unité* 10^{-16} cm^2).

[Values of the ionization cross-section for zinc (in 10^{-16} cm^2.]

E (eV)	FORMULE SEMI-EMPIRIQUE	EXPERIENCE REF. [18],[9]	THEORIE				
			REF.[11]	REF.[12]	REF.[13]	REF.[14]	REF.[15]
9,4	0	0		0		0	0
10	0,13	0,13		0,96		0,16	0,3
11	0,36	0,39		1,4		0,46	0,78
12	0,59	0,65		1,9		0,8	1,2
13	0,93	0,96		2,38		1,1	1,62
14	1,3			2,73		1,4	1,95
15	1,68			3,05		1,6	2,3
20	3,21			3,95		2,4	3,5
25	4,19			4,23		-	4,2
30	4,68			4,28		3,0	4,7
40	5,00			4,09		3,1	5,3
50	5,05	de 50 eV à		3,80		2,8	5,43
60	4,97	75 eV [9]		3,51	7,9	2,65	5,5
75	4,80	5,03± 0,45	5,31	-		2,50	5,46
80	4,55			-		2,4	5,38
90	4,35			-		2,3	5,28
100	4,16			2,72		2,2	5,16

Tableau III. — *Valeurs de la section efficace d'ionisation pour le cadmium (en unité* 10^{-16} cm^2).

[Values of the ionization cross-section for cadmium (in 10^{-16} cm^2).]

E (eV)	FORMULE SEMI-EMPIRIQUE	EXPERIENCE REF.[18],[9]	THEORIE				
			REF.[11]	REF.[12]	REF.[13]	REF.[14]	REF.[20]
9	0	0		0		0	0
10	0,21	0,2		1,55		0,32	0,25
11	0,42	0,4		2,2		0,67	0,61
12	0,63	0,62		2,8		1,02	0,98
13	0,81	0,82		3,25		1,34	1,8
14	0,97			3,62		1,63	2,84
15	2,4			3,92		1,88	3,91
20	5,2			4,70		2,7	8,31
25	6,9			4,94		3,06	-
30	7,9			5,00		3,2	12,3
40	8,62			4,85		3,2	13,3
50	8,66	de 50 eV à		4,7		3,05	13,2
60	8,45	75 eV [9]		4,59		2,9	12,7
75	7,97	8,54 ± 0,33		-		2,6	11,7
80	7,81			-		2,57	11,4
90	7,48			-		2,43	10,7
100	7,16			4,44		2,3	10,2

On observe en général un bon accord entre nos valeurs calculées et les valeurs expérimentales. Les écarts sont dans la limite des erreurs expérimentales.

Au seuil d'ionisation, les courbes coïncident pratiquement. Les sections efficaces augmentent linéairement avec l'énergie de l'électron projectile. Cependant, il existe une région où les courbes empiriques s'écartent un peu des courbes expérimentales. Par exemple, alors que les courbes empiriques continuent à augmenter, la courbe d'ionisation du zinc présente un plateau à environ 2 eV du seuil, et celle du cadmium présente une bosse à environ 3,5 eV du seuil. Cette structure se manifeste aussi dans le cas du mercure [18]. Hickam a essayé d'associer les structures observées à l'autoionisation des états identifiés par Beutler [26]. Sur les deux figures sont indiqués certains états de ce type.

Outre les processus d'autoionisation, d'autres processus tels que l'ionisation multiple etc... peuvent intervenir. Ces processus peuvent expliquer que les courbes empiriques sont un peu déplacées vers la droite par rapport aux courbes expérimentales. Puisque l'écart entre nos résultats et les courbes expérimentales, même dans cette gamme d'énergie, se trouve dans la limite des erreurs expérimentales, ces processus peuvent être négligés dans le calcul.

3.4 Constante de vitesse d'ionisation. — Nous allons considérer d'abord le cas du cadmium. De manière générale, la constante de vitesse d'ionisation K_i s'écrit :

$$K_i = \sqrt{2/m_e} \cdot \int_{E_i}^{\infty} Q(E) \cdot \sqrt{E} \cdot f(E) \cdot \mathrm{d}E\,, \quad [\mathrm{cm^3\,s^{-1}}] \tag{13}$$

où m_e est la masse de l'électron projectile, $Q(E)$ est la section efficace d'ionisation, E_i est l'énergie d'ionisation de l'atome et $f(E)$ est la fonction de distribution en énergie des électrons (FDE).

Dans les lasers He-Cd$^+$ récents, les conditions optimales typiques de la décharge sont : $p_{He} = 3{,}5$ torr ; $p_{Cd} \sim 10^{-3}$ torr ; $I = 100$ à 150 mA. Dans ces conditions, en employant la FDE obtenue par Mori *et al.* [31] et la relation (8) nous avons calculé la constante de vitesse d'ionisation pour le processus d'ionisation directe de l'état fondamental du cadmium. Les résultats sont donnés dans le tableau IV. Nos résultats calculés sont comparés aux résultats mesurés par McKenzie [30] dans les mêmes conditions.

En fait, McKenzie et Mori ont suggéré que dans les conditions de fonctionnement du laser He-Cd$^+$ l'ionisation directe de l'état fondamental est dominante dans le mécanisme d'ionisation du cadmium. Les résultats de notre calcul confirme leur hypothèse.

Tableau IV. — *Valeurs de la constante de vitesse d'ionisation directe de l'état fondamental du cadmium.*

[Values of the direct ionization rate constant of the cadmium ground state.]

E/N_{He} $[\mathrm{Vcm^2}] \times 10^{-16}$	K_i $[\mathrm{cm^3 s^{-1}}] \times 10^{-8}$	
	Nos resultats	Expérience, REF. [30]
1,5	1,8	3
2,6	3,8	5,2

Il faut cependant tenir compte de la contribution de l'ionisation des métastables $5p\,^3P_{0,2}$ de cadmium présents dans la décharge. Dans la décharge He-Cd pour laquelle l'énergie moyenne des électrons est plus élevée que dans la décharge de cadmium pur [10] avec une densité électronique de l'ordre de 10^{12} cm^{-3}, on peut considérer que ce processus est pratiquement saturé. McKenzie a estimé la constante de vitesse d'ionisation correspondante à $1{,}5 \times 10^{-8}$ cm^3 s^{-1}. Si nous ajoutons cette quantité à nos valeurs obtenues pour l'ionisation directe, nous obtenons une constante globale d'ionisation en bon accord avec les résultats expérimentaux de McKenzie.

Une discussion similaire peut s'appliquer au cas du zinc.

4. Conclusions.

Nous avons déduit une expression analytique semi-empirique pour la section efficace électronique d'ionisation des atomes de zinc et de cadmium. Les résultats sont en bon accord avec les données expérimentales. Ces résultats sont significativement différents des résultats théoriques de la littérature et montrent que l'on peut négliger les processus d'ionisation multiple et d'autoionisation. Dans un article ultérieur (II), nous utiliserons cette formule pour déterminer les paramètres de plasma de la colonne positive des lasers hélium-vapeurs métalliques.

Remerciements.

Nous remercions le Prof. I. M. Popescu, Directeur du Laboratoire d'Opto-Electronique, département de Physique de l'Institut Polytechnique de Bucarest (Roumanie), qui nous a suggéré ce sujet ; Dr H. Van Regemorter et A. Giusti pour leurs conseils et l'inrétêt qu'ils ont porté à ce travail ; Dr J. Bretagne pour les discussions sur les résultats.

Bibliographie

[1] SILFVAST, W. T., *Appl. Phys. Lett.* **13** (1960) 169 ; **15** (1969) 23.

[2] COLLINS, G. J., *J. Appl. Phys.* **44** (1973) 4633.

[3] BROWNE, P. G. et DUNN, M. H., *J. Phys. B* **6** (1973) 1103.

[4] GOTO, T., KAWAHARA, A., COLLINS, G. J. et HATTORI, S., *J. Appl. Phys.* **42** (1971) 3816.

[5] GOTO, T., KANO, H. et HATTORI, S. J., *Appl. Phys.* **43** (1972) 506.

[6] KANO, H., GOTO, T. et HATTORI, S., *I.E.E.E. J. Quantum Electronics* **QE 9** (1973) 776.

[7] MIZERACZYK, J. K., *J. Appl. Phys.* **46** (1975) 1847.

[8] TA VAN, T., Thèse de Doctorat (en roumain) l'Institut Polytechnique de Bucarest, Roumanie (1975).

[9] POTTIE, R. F., *J. Chem. Phys.* **44** (1966) 916.

[10] PENKIN, N. P., REDKO, T. P., *Opt. Spectros.* URSS (Trad. Anglaise) **23** (1967) 353.

[11] OTVOS, J. W. et STEVENSON, D. P., *J. Am. Chem. Soc.* **78** (1956) 54.

[12] MCGUIRE, E. J., *Phys. Rev.* **16** (1977) 62.

[13] STAFFORD, F. E., *J. Chem. Phys.* **45** (1966) 859.

[14] DRAWIN, H. W., *Z. Physik* **164** (1961) 513.

[15] LOTZ, W., *Z. Physik* **206** (1967) 205.

[16] BETHE, H., *Ann. Physik* **5** (1930) 352.

[17] RUDGE, N. R. H. et SCHWARTZ, S. B., *Proc. Phys. Soc.* **88** (1966) 563.

[18] HICKAM, W. H., *Phys. Rev.* **93** (1954) 652 ; **95** (1954) 703.

[19] HICKAM, W. H., Scientific Report 1819, Westinghouse Research Laboratory, March 31 (1954).

[20] GRYZINSKI, M., *Phys. Rev.* **115** (1959) 374 ; **138** (1965) A305, A322, A336.

[21] PRASAD, S. S., PRASAD, K., *Proc. Phys. Soc.* **82** (1963) 655.

[22] OCHKUR, V. I. et PETRUKIN, A. M., *Opt. Spectros URSS* (Traduction anglaise) **14** (1963) 245.

[23] KINGSTON, A. E., *Phys. Rev.* **135** (1964) A 1537.

[24] MCFARLAND, R. H., *Phys. Rev.* **139** (1965) A40.

[25] VRIENS, L., *Phys. Lett.* **8** (1964) 260.

[26] BEUTLER, H., *Z. Physik* **87** (1933) 176.

[27] MOORE, C. E., *Atomic Energy Levels* Natl. Bur. Std. (U.S.), Circ. N° 407 (1958).

[28] STROMINGER, D., HOLLANDER, J. M. et SEABORG, G. T., *Rev. Phys. Mod.* **30** (1958) 585.

[29] BROWN, S. C., *Basic Data of Plasma Physics* (The Technology Press of The Massachusetts Institute of Technology and John Wiley and Sons, Inc. New York) 1959.

[30] MCKENZIE, A. L., *J. Phys. B.* **10** (1977) 541.

[31] MORI, M., TAKASU, K., GOTO, T., HATTORI, S., *J. Appl. Phys.* **48** (1977) 2226 ; MORI, M., GOTO, T., HATTORI, S., *J. Phys. Soc. Japan* **44** (1978) 1715.