

ORSAY
n° d'ordre:

THESE

PRESENTEE A L'UNIVERSITE DE PARIS-SUD

CENTRE D'ORSAY

PAR

LOUIS CABARET

LABORATOIRE AIME COTTON

C. N. R. S.

POUR OBTENIR

LE TITRE DE DOCTEUR INGENIEUR

SUJET : RÉALISATION D'UNE SOURCE LASER PULSÉE MONOMODE ET
ACCORDABLE EN LONGUEUR D'ONDE DANS L'ULTRA-VIO-
LET LOINTAIN. CONTRIBUTION À L'ÉTUDE DE L'ATOME
D'HYDROGÈNE EN PRÉSENCE D'UN CHAMP ÉLECTRIQUE.

SOUTENUE LE 22 DÉCEMBRE 86 DEVANT LA COMMISSION D'EXAMEN

MM S. LIBERMAN
F. BIRABEN
C. DELSART
C. MORILLON
J. PINARD

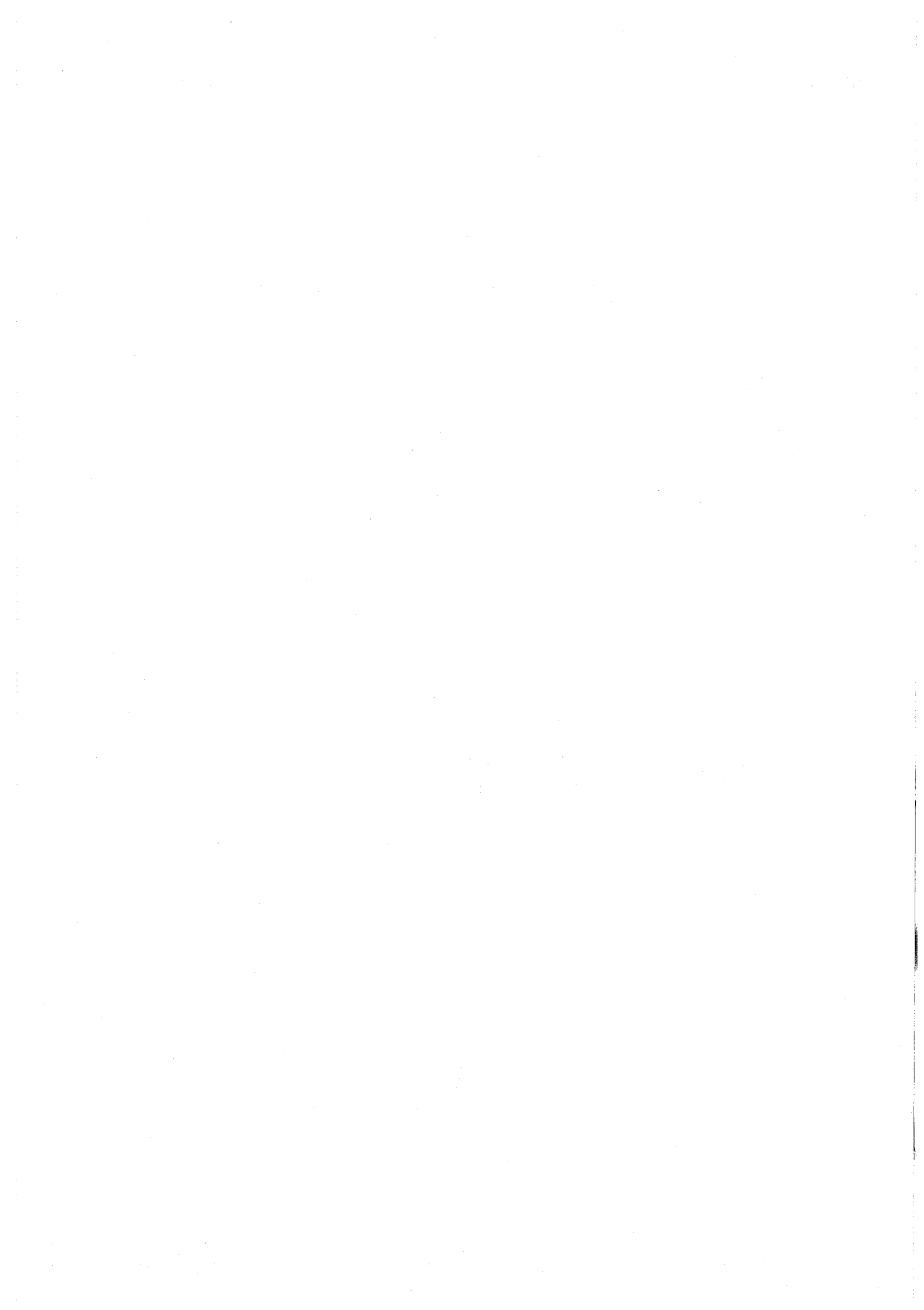


TABLE DES MATIERES

<u>INTRODUCTION</u>	1
<u>CHAPITRE I - PRESENTATION DE L'EXPERIENCE - DISCUSSION SUR LE CHOIX DES METHODES ET DE LA TECHNOLOGIE</u>	6
I.1. Choix du schéma d'excitation de l'atome d'hydrogène...	7
I.2. Présentation du montage expérimental - Discussion sur les choix technologiques.....	9
<u>CHAPITRE II - LA SOURCE LASER PULSEE MONOMODE ET ACCORDABLE</u>	15
II.1. Description du système.....	18
II.2. Rappels théoriques.....	22
II.2.1. L'amplificateur de rayonnement cohérent dans les systèmes à solution de colorant.....	22
A) Considérations théoriques.....	22
B) Considérations de rapport signal sur bruit.	29
C) Le fonctionnement optimal d'un amplifica- teur laser.....	32
II.2.2. Rappels sur le comportement d'une cavité laser en mode injecté.....	38
A) Etude qualitative.....	38
B) Etude quantitative.....	40
II.3. La cavité à double excitation en anneau : description optique et mécanique.....	51
II.3.1. Le jet et la circulation de colorant.....	52
II.3.2. La diode optique.....	53
II.3.3. Les éléments sélecteurs.....	55
II.3.4. La cellule intracavité excitée en impulsion...	60

II.4.	Le système d'asservissement et de balayage.....	61
II.4.1.	Le laser hélium-néon stabilisé en fréquence..	62
II.4.2.	Le sigmamètre : partie optique.....	65
II.4.3.	Le sigmamètre : partie asservissement et balayage.....	67
	A) Asservissement de la différence de marche de l'interféromètre.....	67
	B) Asservissement du laser à colorant.....	70
	C) Le balayage du laser à colorant.....	72
II.5.	Le fonctionnemnet de la cavité en anneau en mode injecté - peformances.....	76
II.5.1.	Problèmes liés à la longueur de la cavité....	76
II.5.2.	Problèmes liés à la perturbation du milieu amplificateur par l'impulsion du laser à YAG.	78
II.6.	La chaîne d'amplification et le doublage de fré- quence.....	80
II.6.1.	Le préamplificateur.....	80
II.6.2.	Les amplificateurs de puissance.....	82
II.6.3.	Le doublage de fréquence.....	84
II.7.	Le système de synchronisation des deux étages laser..	91

CHAPITRE III - GENERATION D'ULTRA-VIOLET LOINTAIN A
LA LONGUEUR D'ONDE DE LA RAIE LYMAN
 α DE L'HYDROGENE.....

III.1.	Rappels sur la théorie des processus non-linéaires du troisième ordre dans les milieux isotropes.....	95
III.1.1.	Expression de la susceptibilité non- linéaire.....	96
III.1.2.	Etude des effets de focalisation sur le processus de génération de troisième harmonique dans les milieux isotropes.....	98
	A) Définition de la condition théorique d'accord de phase.....	99
	B) Définition des conditions expérimenta- les d'accord de phase.....	104

III.1.3.	Prévisions pour réaliser les conditions expérimentales d'obtention d'ultra-violet lointain dans le krypton pur et le mélange krypton-argon.....	105
A)	Cas du krypton pur.....	108
B)	Cas du mélange krypton-argon.....	108
III.1.4.	Quelques considérations spectrales au su- jet du rayonnement généré au troisième harmonique.....	111
III.1.5.	Quelques remarques de synthèse.....	112
III.2.	Génération d'un rayonnement cohérent à la longueur d'onde de Lyman α	114
III.2.1.	Le montage expérimental.....	114
A)	La cellule de triplage.....	114
B)	La cellule de détection de l'ultra- violet lointain.....	116
III.2.2.	Caractérisation de l'émission lumineuse à la longueur d'onde de Lyman α	117
A)	Evaluation de la puissance de l'émis- sion.....	117
B)	Evolution de la puissance en fonction de la pression de krypton.....	121
C)	Caractérisation spectrale.....	124
D)	Résumé des performances.....	127
 <u>CHAPITRE IV - LE JET D'HYDROGENE ATOMIQUE</u>		129
IV.1.	Le système de pompage.....	129
IV.1.1.	Détermination des caractéristiques du pompage.....	139
IV.1.2.	Système de protection des pompes.....	133
IV.2.	La production et le contrôle du jet d'hydrogène atomique.....	135
IV.2.1.	La cellule excitée par radio-fréquence.....	136

IV.2.2.	La collimation du jet.....	139
	A) Estimation de la largeur Doppler résiduelle du jet.....	139
	B) Influence de la forme du diaphragme de collimation sur le profil des raies.....	141
IV.2.3.	Le dispositif de contrôle du jet.....	142
	A) Le montage de détection d'hydrogène atomique.....	142
	B) Détermination des caractéristiques de fonctionnement de la source d'hydrogène atomique.....	144
	C) Evaluation de l'intensité du jet d'hydrogène.....	146

CHAPITRE V - RESULTATS EXPERIMENTAUX - ETUDE DE L'ATOME D'HYDROGENE.....148

V.1.	Etude du niveau $n = 2$ de l'hydrogène en l'absence de champ extérieur.....	148
	V.1.1. Structure fine.....	149
	V.1.2. Le déplacement de Lamb.....	153
	V.1.3. La structure hyperfine.....	154
V.2.	Etude de l'effet Stark pour l'atome d'hydrogène.....	159
	V.2.1. L'atome d'hydrogène en coordonnées paraboliques.....	161
	V.2.2. Ionisation des niveaux Stark.....	166
	V.2.3. Croisement des niveaux Stark de l'hydrogène..	169
	V.2.4. Effet Stark du niveau $n = 2$	171
V.3.	Résultats expérimentaux.....	173
	V.3.1. Spectroscopie de la raie Lyman α (transition $1s \rightarrow 2p$).....	174
	A) En champ nul.....	174
	B) En présence d'un champ électrique statique faible.....	178
	V.3.2. Spectroscopie des états de Rydberg.....	180

A) En champ nul.....	180
B) En présence d'un champ électrique statique.....	181
V.3.3. Ionisation des niveaux Stark.....	187
<u>CONCLUSION</u>	190
<u>REFERENCES</u>	197

Ce travail a été réalisé au laboratoire Aimé Cotton sous la direction de monsieur Sylvain Liberman. Je tiens ici à lui exprimer toute ma reconnaissance pour le soutien continu qu'il m'a toujours apporté.

Je remercie vivement les chercheurs (et enseignants) avec qui j'ai collaboré : messieurs Christophe Blondel, René-Jean Champeau, Christian Delsart. Ils m'ont aidé à mener à bien cette entreprise - et même à travers l'épreuve du feu - par leur présence et leurs conseils.

J'ai profité des connaissances et intuitions inépuisables de monsieur Jacques Pinard dans tous les domaines de la physique ; jointe à celles-ci une sensibilité extrême pour tous les problèmes expérimentaux : c'est à un véritable maître que je dois la plupart de mes progrès dans ce domaine passionnant.

Je remercie sincèrement monsieur Claude Morillon, professeur au C.N.A.M., pour avoir accepté de participer à ce jury. Sa présence me rattache en quelque sorte à mes origines.

Un vif merci également à monsieur François Biraben pour sa participation au jury et pour l'intérêt qu'il porte à ce travail.

Je voudrais exprimer une reconnaissance toute particulière aux personnels techniques : la réalisation d'une expérience telle que celle-ci est le fruit de leur collaboration, même obscure. Sans pouvoir citer tout le monde, je voudrais mentionner cependant, les personnels des ateliers de mécanique et de chaudronnerie ; monsieur Roger Leroux et le service d'électronique ; messieurs H. Calvignac, Bernard Demarets et Dan Marinescù pour les dessins de cette thèse ; enfin monsieur Gaston Golman que j'ai maintes fois sollicité pour des couches minces non absorbantes.

Cette transition me permet, pour terminer, de ne pas oublier l'indispensable appui affectif et moral de ma femme Geneviève et de mes enfants Blandine et Louis-Marie.

INTRODUCTION

INTRODUCTION

L'étude présentée dans ce mémoire a un caractère essentiellement instrumental. Elle se situe dans l'environnement d'un laboratoire de recherche en physique atomique, c'est pourquoi elle comporte également une contribution expérimentale. L'objectif à atteindre - qui a motivé la réalisation de l'ensemble instrumental présenté ici - était de faire la spectroscopie de l'atome d'hydrogène en présence d'un champ électrique.

On peut dire que pendant le siècle écoulé, l'atome d'hydrogène a constitué l'un des principaux centres de préoccupation des physiciens. C'est en 1885 que Balmer, après avoir observé le spectre des raies visibles de l'hydrogène, détermina le premier une loi simple qui allait ouvrir la voie à la mécanique quantique. En 1889, Rydberg énonçait cette loi à l'aide de la formule suivante :

$$\frac{1}{\lambda} = R \left(\frac{1}{4} - \frac{1}{p^2} \right)$$

qui rattachait la suite des raies observées (et les longueurs d'ondes λ qui les caractérisent) à la suite des nom-

bres entiers p ; la constante R prit plus tard le nom de "**constante de Rydberg**". Lorsqu'on découvrit les autres séries de raies n'appartenant pas au spectre visible (séries de Lyman, Paschen, Brackett, Pfund) il fut aisé de les rattacher à la même loi en faisant intervenir cette fois-ci un autre nombre entier n , caractéristique de la série,

$$\frac{1}{\lambda} = R \left(\frac{1}{n^2} - \frac{1}{p^2} \right)$$

Ritz, en 1908, introduisit la notion de "**termes spectraux**" suggérant déjà que l'émission d'une raie spectrale tenait en fait son origine de deux états particuliers de l'atome. C'est Niels Bohr qui interpréta plus exactement cette notion en 1913, en termes d'énergies quantifiées : "**l'énergie emmagasinée par un atome ne peut prendre que certaines valeurs particulières formant une suite discontinue**"; Planck avait déjà énoncé la loi des échanges d'énergie quantifiés entre matière et rayonnement.

Sans continuer dans le détail cet historique, il est remarquable de noter que l'atome d'hydrogène a toujours été au centre des progrès importants de la physique. Dans la foulée de Bohr (qui détruisait avec son nouveau modèle atomique le modèle classique de l'atome de Thomson), Sommerfeld introduisit les acquis de la mécanique relativiste . Dirac trouva l'équation qui rend compte de la structure fine ainsi que du spin de l'électron. Les expériences de Lamb et Retherford [83], qui révélèrent le "**Lamb shift**" furent à l'origine de l'électrodynamique quantique.

Les physiciens, sachant que l'atome d'hydrogène est le plus simple des systèmes atomiques, se sont toujours attachés à le décrire exactement, même lorsque la confrontation avec des expériences de plus en plus précises, devint difficile. On laissa un peu de côté l'hydrogène pendant quelques décennies pour s'intéresser à des atomes complexes dont l'étude expérimentale était d'un accès plus facile. L'apparition des lasers, et surtout des lasers accordables au tout début des années soixante dix donna un nouvel essor à la physique atomique. Une parfaite compréhension du comportement de l'atome d'hydrogène, dans toutes les situations physiques, doit permettre d'approfondir notre connaissance, non seulement sur les autres atomes mais aussi sur un certain nombre de constantes fondamentales.

C'est pourquoi, dans les dernières décennies, les recherches sur l'atome d'hydrogène ont porté principalement sur les thèmes suivants : détermination de la structure hyperfine du niveau fondamental à l'aide du maser à hydrogène, détermination de plus en plus précise de la constante de Rydberg, du rapport des masses électron-proton, du déplacement de Lamb du niveau fondamental ; ceci pour les constantes fondamentales. D'un point de vue plus conceptuel, quelques groupes ont cherché à placer l'atome dans des situations où les perturbations appliquées peuvent être considérées comme intenses et à en donner une description complète. Ce travail, déjà réalisé sur la plupart des alcalins et d'autres atomes, consiste à porter l'atome sur un niveau très excité

(niveau de Rydberg) pour que des champs (magnétique ou électrique) même de faible intensité, soient malgré tout perçus comme intenses par l'atome compte tenu de sa fragilité. Cependant, parmi les atomes à un électron périphérique, l'hydrogène représente un cas très particulier à cause de sa symétrie sphérique parfaite. Dans la plupart des situations, son comportement est entièrement calculable, ce qui n'est pas possible pour les autres atomes. Pour l'hydrogène, porter sélectivement l'atome sur un niveau de Rydberg déterminé n'est pas une mince affaire : à partir du niveau fondamental, on peut réaliser cette opération en éclairant l'atome avec une lumière monochromatique dans l'ultra-violet lointain (la longueur d'onde se situant à environ 100 nm) ; la réalisation pratique serait délicate. Plus simplement, il est possible de porter d'abord l'atome sur le premier niveau excité $n = 2$ soit avec une source lumineuse (à la longueur d'onde de 121,6 nm, à un photon, 243 nm à deux photons), soit avec un procédé non radiatif ; une deuxième excitation lumineuse porte ensuite l'atome sur le niveau de Rydberg choisi. Dans cette dernière situation, il faut disposer de sources lumineuses intenses et très monochromatiques dans l'ultra-violet.

Depuis moins de dix ans, on sait obtenir un rayonnement laser intense et accordable dans l'ultra-violet lointain, et ce qui a été fait pour les atomes complexes pouvait être entrepris sur l'hydrogène. Le laboratoire Aimé Cotton a été un pionnier dans l'étude des niveaux de Rydberg des al-

calins perturbés par des champs extérieurs [6 à 10, 104]. Récemment, des spectres de photoexcitation en présence d'un champ magnétique intense et de photoionisation d'atomes de lithium ont été enregistrés et interprétés [11 à 13]. Le travail présenté ici sur l'hydrogène est un prolongement de ces expériences. Il a été effectué grâce à la réalisation d'un système laser à très haute résolution dans l'ultraviolet lointain dont les performances tant du point de vue de la finesse spectrale que de l'intensité, sont pratiquement sans équivalent.

Le plan qui a été adopté dans ce mémoire reflète exactement la démarche suivie pour mener cette expérience jusqu'à son terme :

- Choix des méthodes et de la technologie (chapitre I),
- Réalisation de la source monomode dans le spectre visible (chapitre II),
- Extension au domaine de l'ultraviolet lointain (Lyman α) par conversion de fréquence : doublage puis triplage de fréquence (chapitre III),
- Réalisation d'un jet d'hydrogène atomique (chapitre IV),
- Etude expérimentale de l'hydrogène atomique (chapitre V).

Dans le premier chapitre nous allons donc faire une présentation générale de l'expérience.

CHAPITRE I

PRESENTATION DE L'EXPERIENCE

DISCUSSION SUR LE CHOIX DES METHODES ET DE LA TECHNOLOGIE

I. PRESENTATION DE L'EXPERIENCE

DISCUSSION SUR LE CHOIX DES METHODES ET DE LA TECHNOLOGIE

Contrairement aux alcalins pour lesquels l'excitation du premier niveau de résonance peut en général se faire aisément à partir du niveau fondamental de l'atome, l'excitation de la transition Lyman α de l'hydrogène posait jusqu'à très récemment des problèmes technologiques insurmontables. L'apparition de lasers à la fois puissants et fins spectralement ouvre enfin, depuis moins de 10 ans, la possibilité d'exploiter les effets non linéaires pour produire de l'ultra-violet lointain et donc d'explorer complètement l'atome d'hydrogène [1 à 5].

Les expériences effectuées au Laboratoire Aimé Cotton sur les états de Rydberg des alcalins [6 à 10] ne pouvaient trouver leur prolongement que dans une étude systématique de l'atome le plus simple, atome pour lequel un traitement théorique complet et possible dans la majorité des cas.

Faisant suite à une expérience similaire sur l'atome de lithium [11 à 13], l'expérience que nous allons décrire n'est que le début d'une opération "étude de l'atome d'hydrogène excité près de la limite d'ionisation dans des champs électrique et magnétique intenses".

I.1. CHOIX DU SCHEMA D'EXCITATION DE L'ATOME D'HYDROGENE

L'excitation de l'atome d'hydrogène jusqu'à la limite d'ionisation peut se faire suivant plusieurs schémas. Les plus couramment décrits sont les suivants :

1) Excitation du niveau métastable 2s par une décharge ou par bombardement électronique d'un jet d'atomes d'hydrogène, puis excitation vers des états plus élevés avec un laser (par exemple avec une transition à deux photons, sans effet Doppler [15a]). Cette méthode, associée à la spectroscopie sans effet Doppler par absorption saturée, a permis de résoudre pour la première fois la structure fine de la raie H_{α} et d'observer le Lamb shift directement dans le spectre visible (Hänsch et coll. [15b]).

2) Excitation du niveau métastable 2s par transition à deux photons à partir du niveau fondamental 1s ($\lambda = 243$ nm) puis, à partir du niveau 2s, excitation de niveaux de Rydberg avec un deuxième étage laser ($\lambda > 365$ nm) [14].

3) Processus utilisant trois photons non résonnants pour exciter directement des niveaux de Rydberg ($\lambda \approx 274$ nm) [16].

4) Excitation du niveau 2p par transition à un photon à partir du niveau fondamental 1s ($\lambda = 121,6$ nm) puis, à partir du niveau 2p, excitation des niveaux de Rydberg avec un deuxième étage laser ($\lambda > 365$ nm) [17].

C'est le schéma 4) que nous avons adopté. Les raisons en sont que tous les autres schémas présentent des inconvénients sérieux pour le type d'expériences que nous envisageons d'effectuer.

Dans le schéma 1), hormis le fait que la densité d'hydrogène excité sur le niveau 2s est faible, la méthode elle-même est inutilisable pour nos expériences où l'atome doit être soumis à des champs extérieurs. En effet, l'état métastable 2s étant produit avant la zone d'interaction, il est détruit dès l'entrée dans la partie du montage où existe un champ électrique (ou magnétique) même faible.

Le schéma 2) a été utilisé avec une production d'hydrogène en cellule, c'est-à-dire une densité d'atomes d'environ 10^{15} cm^{-3} . Pour faire de la spectroscopie à haute résolution sur un jet, on ne peut pas espérer obtenir une densité d'atomes supérieure à 10^{10} - 10^{11} cm^{-3} . Par conséquent, une excitation à deux photons risque de mener à une population extrêmement faible sur le niveau 2s compte tenu de la probabilité de transition ; dans ces conditions, l'observation des niveaux de Rydberg risque d'être très compromise.

Le processus 3), utilisé avec une cellule d'hydrogène atomique, est très inefficace (trois photons non résonnants) et également inutilisable pour faire de la spectroscopie à haute résolution à cause de l'élargissement dû à l'effet de puissance du laser (10^9 W.cm^{-2}).

Avec le schéma 4) ces inconvénients n'existent pas. On pourrait opposer le fait que le procédé de triplage de

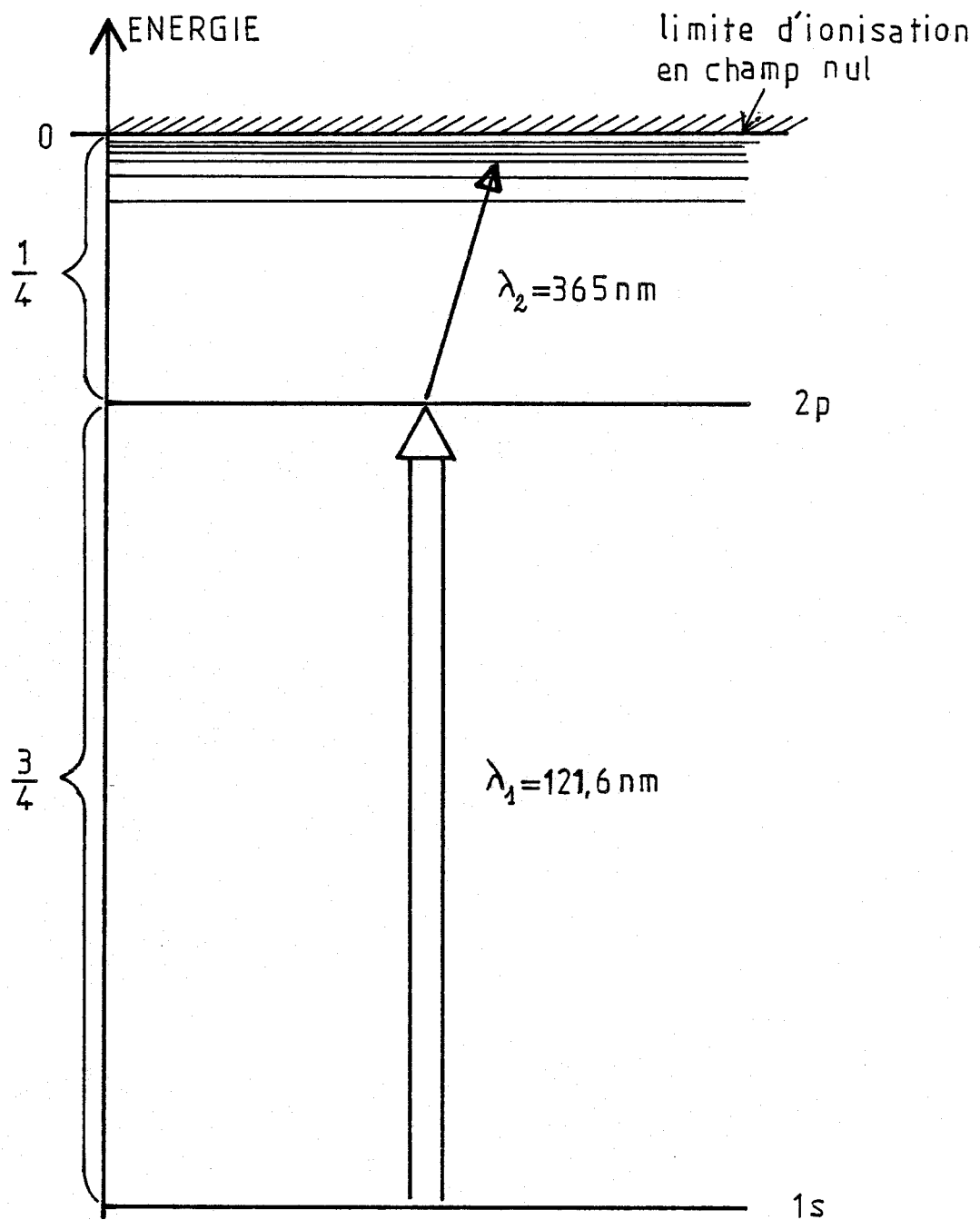


FIGURE I

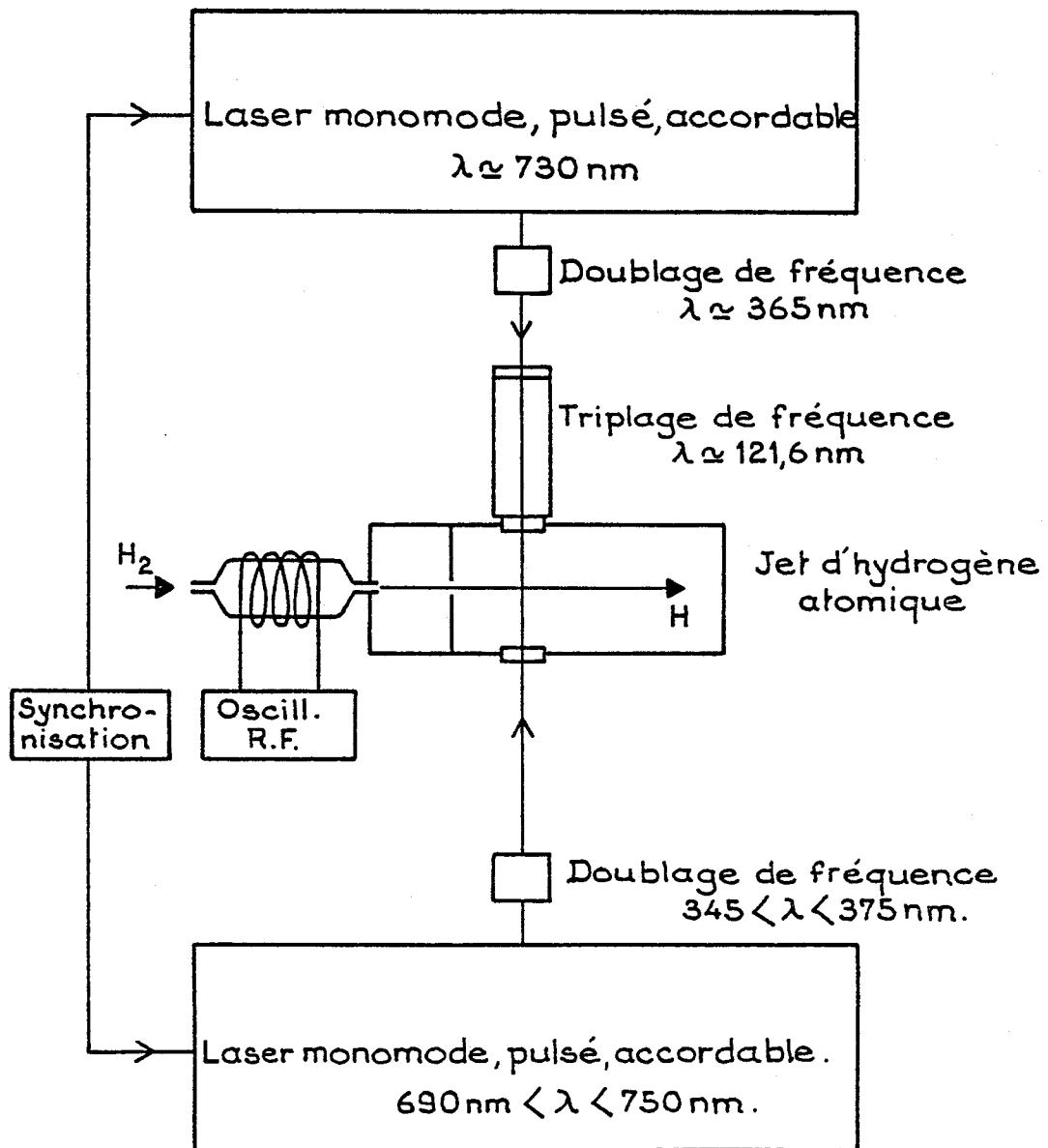


schéma d'ensemble de l'expérience

FIGURE 2

fréquence nécessaire à l'obtention du rayonnement à 121,6 nm a un rendement très faible (10^{-5} à 10^{-6}), cependant, dans de bonnes conditions que nous préciserons, on peut obtenir jusqu'à 10 W de puissance crête à cette longueur d'onde, ce qui permet même de saturer la transition de résonance $1s \rightarrow 2p$. Par ailleurs, dans un jet atomique, la densité d'atomes n'est pas assez importante pour que l'on ait du piégeage de rayonnement bien qu'utilisant une transition de résonance.

La figure 1 illustre le schéma d'excitation retenu. Les grandes lignes du montage expérimental se déduisent directement de ce choix.

I.2. PRESENTATION DU MONTAGE EXPERIMENTAL - DISCUSSION SUR LES CHOIX TECHNOLOGIQUES

Le montage expérimental se compose donc essentiellement de deux lasers pulsés monomodes accordables et synchronisés correspondant chacun à un étage d'excitation et d'un jet d'hydrogène atomique (figure 2).

Le fait d'avoir choisi un laser monomode pour le deuxième étage s'explique facilement, puisque nous cherchons à obtenir la meilleure résolution possible. Pour le premier étage, au contraire, ce choix est moins évident ; un laser de résolution moyenne (par exemple 100 mK) aurait pu suffire. Cependant, un système laser pulsé monomode tel que celui

qui a été mis au point au Laboratoire Aimé Cotton, présente un certain nombre d'avantages dans notre cas [18,19] :

- La structure spatiale du faisceau est proche de celle d'un mode TEM_{00} , ce qui est d'une importance capitale pour le triplage de fréquence.

- La densité spectrale d'énergie est importante, et par suite, la transition $1s \rightarrow 2p$ peut être peuplée très efficacement (on arrive à saturer cette transition).

- La résolution est suffisante pour résoudre la structure fine du niveau $n = 2$ et la structure hyperfine du niveau fondamental, augmentant ainsi les possibilités de choix sur le niveau intermédiaire (en présence d'un champ électrique, on a ainsi la possibilité de sélectionner une transition de nombre quantique m_j donné en choisissant une polarisation π ou σ . Se reporter au chapitre V).

- L'émission laser étant monomode, on pourrait envisager de réaliser le triplage de fréquence dans une cavité accordée. Cependant, dans notre cas, la trop faible durée des impulsions ne permettrait pas d'obtenir un gain exploitable avec une cavité contenant obligatoirement des éléments aberrants.

Les impulsions lumineuses relatives aux deux étages d'excitation doivent arriver de façon synchronisée sur le jet, et ceci d'autant mieux que la durée de vie du niveau $2p$ est très brève ($1,6 \cdot 10^{-9}$ s). Une façon simple de résoudre ce problème aurait été de réaliser ces deux étages à partir

d'une seule source pulsée ; mais nous disposons d'une source pulsée monomode en état de fonctionnement pour le deuxième étage et par ailleurs nous avons besoin, pour le premier étage, de toute l'énergie délivrée par un laser à YAG (500 mJ à la longueur d'onde de 532 nm). Nous avons donc décidé de synchroniser les deux lasers avec une précision de 2 ns, ce qui est envisageable à condition d'agir directement sur les cellules de Pockels des lasers à YAG.

Le doublage de fréquence n'offre plus aucun problème à l'heure actuelle et des rendements proches de 30 % sont courants avec des cristaux de KDP en partant d'un faisceau fondamental dont la puissance crête est d'environ 5 MW.

Le triplage de fréquence, quant à lui, est de mise au point plus récente. Cependant, la génération d'ultra-violet lointain a fait l'objet de nombreuses publications et les conditions expérimentales optimales ont été parfaitement définies. A la longueur d'onde de Lyman α , les procédés d'obtention d'un rayonnement ultra-violet sont tous basés sur le mélange de fréquences à quatre ondes :

1) Sommes ou différences de fréquences dans des vapeurs métalliques ou des gaz rares à partir de photons différents [2, 20 à 21].

2) Somme de fréquences dans les gaz rares à partir de photons identiques [23].

La première méthode, bien que pouvant conduire à des rendements plus élevés, a le désavantage de mettre en oeuvre

des techniques plus complexes : utilisation de plusieurs longueurs d'ondes laser, de fours à vapeurs métalliques du type "Heat-pipe", superposition délicate de faisceaux lumineux. La deuxième méthode est certainement plus souple puisqu'un seul système laser est nécessaire pour produire un rayonnement monomode dans l'ultra-violet lointain et un gaz rare contenu dans une simple cellule sert de milieu non linéaire. La puissance que l'on peut obtenir avec une telle méthode est largement suffisante, comme il a été indiqué plus haut, pour exciter le niveau $n = 2$ de l'hydrogène.

Dans la plus grande partie des expériences prévues avec ce montage, le laser du premier étage doit rester stabilisé sur la transition $1s \rightarrow 2p$. S'agissant d'une transition de résonance très intense, on pourrait imaginer s'asservir directement sur la fluorescence émise par les atomes du jet. En réalité, la source pulsée fonctionne à une fréquence faible (10 Hz) et le laser étant sujet à des instabilités de fréquence plus élevée, l'asservissement risquerait de ne pas être efficace. D'autre part, la détection de la fluorescence elle-même n'est pas simple ; compte tenu de l'angle solide de collection de la fluorescence, du nombre de photons créés dans la zone d'interaction et du rendement quantique du détecteur, on peut s'attendre à détecter une dizaine d'événements par impulsion, noyés dans le bruit de lumière parasite : c'est peu pour réaliser un asservissement.

Nous avons donc choisi de stabiliser la fréquence du système laser sur la transition à l'aide d'un sigmamètre

[34] lui-même asservi par un laser hélium-néon stabilisé à quelques mégahertz.

La partie jet atomique n'offre de difficulté qu'en ce qui concerne la production d'hydrogène atomique sous la forme la plus unidirectionnelle possible ; pour l'hydrogène, l'effet Doppler lié à la vitesse thermique des atomes et à la fréquence élevée de la transition Lyman α est très important (> 30 GHz). Le faisceau laser d'excitation étant dirigé perpendiculairement au jet, on minimise l'effet Doppler résiduel par une forte collimation du jet atomique. La dissociation de l'hydrogène moléculaire peut être réalisée de multiples façons : bombardement électronique, dissociation thermique à une température élevée (2500 K), décharge électrique continue dans un tube à décharge du type Wood, décharge haute fréquence. Cette dernière solution, qui est adoptée généralement pour confectionner les jets d'hydrogène atomique conduit à un taux de dissociation élevé (> 80 %) joint à une mise en oeuvre assez simple. La dissociation est donc effectuée dans une cellule en pyrex refroidie à l'eau et excitée par un résonateur accordé à une fréquence d'environ 23 MHz.

Le système sous vide comporte deux chambres en pompage différentiel (se reporter au chapitre IV). La première est délimitée par le capillaire de la cellule d'hydrogène et le diaphragme de collimation ; dans cette chambre, la pression doit rester inférieure à 10^{-4} mb de façon à ce que le jet ne soit pas détruit. La deuxième est la chambre d'inter-

action dans laquelle ne subsiste que le jet atomique sous une pression résiduelle d'environ 10^{-7} mb, dans ces conditions, la détection des protons formés par photo-ionisation ou par ionisation par champ peut se faire sans problème à l'aide d'un multiplicateur d'électrons.

La première partie du montage que nous allons détailler maintenant est la source laser pulsée monomode fonctionnant dans la partie visible du spectre.

CHAPITRE II

LA SOURCE LASER PULSEE MONOMODE ET ACCORDABLE

II. LA SOURCE LASER PULSEE MONOMODE ET ACCORDABLE

Il n'existe pas de source laser produisant directement un rayonnement de fréquence accordable dans l'ultra-violet lointain. A l'heure actuelle, le seul moyen d'obtenir un tel rayonnement consiste à fabriquer une source laser accordable fonctionnant dans le spectre visible ou proche ultra-violet puis, par des interactions non linéaires dans divers milieux, à augmenter la fréquence laser jusqu'à la fréquence désirée.

Obtenir un rayonnement monomode dans l'ultra-violet lointain est alors, en réalité, un problème de source monomode puissante dans le visible ou le proche ultra-violet. Plus précisément, il s'agit de réaliser un oscillateur monomode fonctionnant en régime impulsionnel. L'intensité issue de cet oscillateur est toujours faible, il reste donc à résoudre ensuite un simple problème d'amplification.

Diverses méthodes ont été utilisées récemment pour produire un rayonnement pulsé monomode ; parmi les plus importantes, nous pouvons citer :

- Cavité comportant un réseau en montage Littrow associé à des éléments sélecteurs du type Fabry-Perot ou coin interférentiel [24 à 25b].

- Cavité comportant un réseau en incidence rasante associé à un autre réseau en montage Littrow ou à des prismes expandeurs de faisceau [26 à 28].

- Oscillateur dont la fréquence est bloquée par injection d'un signal laser monomode continu [29 à 32].

Avec les deux premières méthodes, il est très difficile d'obtenir une largeur du profil spectral qui soit limitée seulement par la durée de l'impulsion. Même si cette limite est atteinte à chaque impulsion, la moyenne dans le temps de la largeur spectrale est beaucoup plus importante. Ceci est dû au fait qu'il est impossible avec des impulsions de courte durée et de faible récurrence, de contrôler parfaitement par asservissement tous les paramètres de la cavité. Par ailleurs, les impulsions de pompage ne sont jamais absolument stables et d'une impulsion à l'autre les conditions d'excitation du colorant sont différentes. De plus, toujours à cause du manque de contrôle sur les paramètres de la cavité, les éléments assurant le balayage en fréquence doivent agir absolument sans à-coup pour conserver une stabilité suffisante du mode.

La dernière méthode est certainement meilleure en ce sens que le contrôle de l'émission est entièrement effectué par un laser monomode continu dont la dérive peut être rendue inférieure à la largeur spectrale de l'émission pulsée de plus d'un ordre de grandeur. Cependant, il est nécessaire que la cavité maître (cavité continue monomode) et la cavité esclave (cavité pulsée dans laquelle on injecte le

signal laser monomode) soient accordées à la même fréquence. Cette contrainte suppose en particulier un asservissement de mise au point délicate pour effectuer un balayage en fréquence.

On peut citer une autre méthode consistant à amplifier directement l'émission continue d'un laser monomode à l'aide d'une source pulsée. Partant d'un niveau de faible intensité, il faut utiliser des gains d'amplification élevés et il est difficile de s'affranchir du fond de fluorescence.

Le système original qui a été imaginé et mis au point au Laboratoire Aimé Cotton par S. Liberman et J. Pinard [18] réunit les qualités de ces deux dernières méthodes et en supprime les inconvénients. La cavité maître et la cavité esclave n'en sont plus qu'une seule : une cavité normalement utilisée comme oscillateur monomode continu et dans laquelle le jet de colorant est excité à la fois en continu et en impulsion. L'impulsion lumineuse se construit à l'intérieur de cette unique cavité préférentiellement sur le mode qui y existe déjà si bien que cette cavité à double excitation est exactement équivalente à un ensemble de deux cavités maître-esclave. Dans la suite, pour des raisons de perturbation et de saturation dans le milieu amplificateur, les excitations continues et pulsées ont été découplées pour donner naissance au système que nous décrivons dans la suite de ce chapitre.

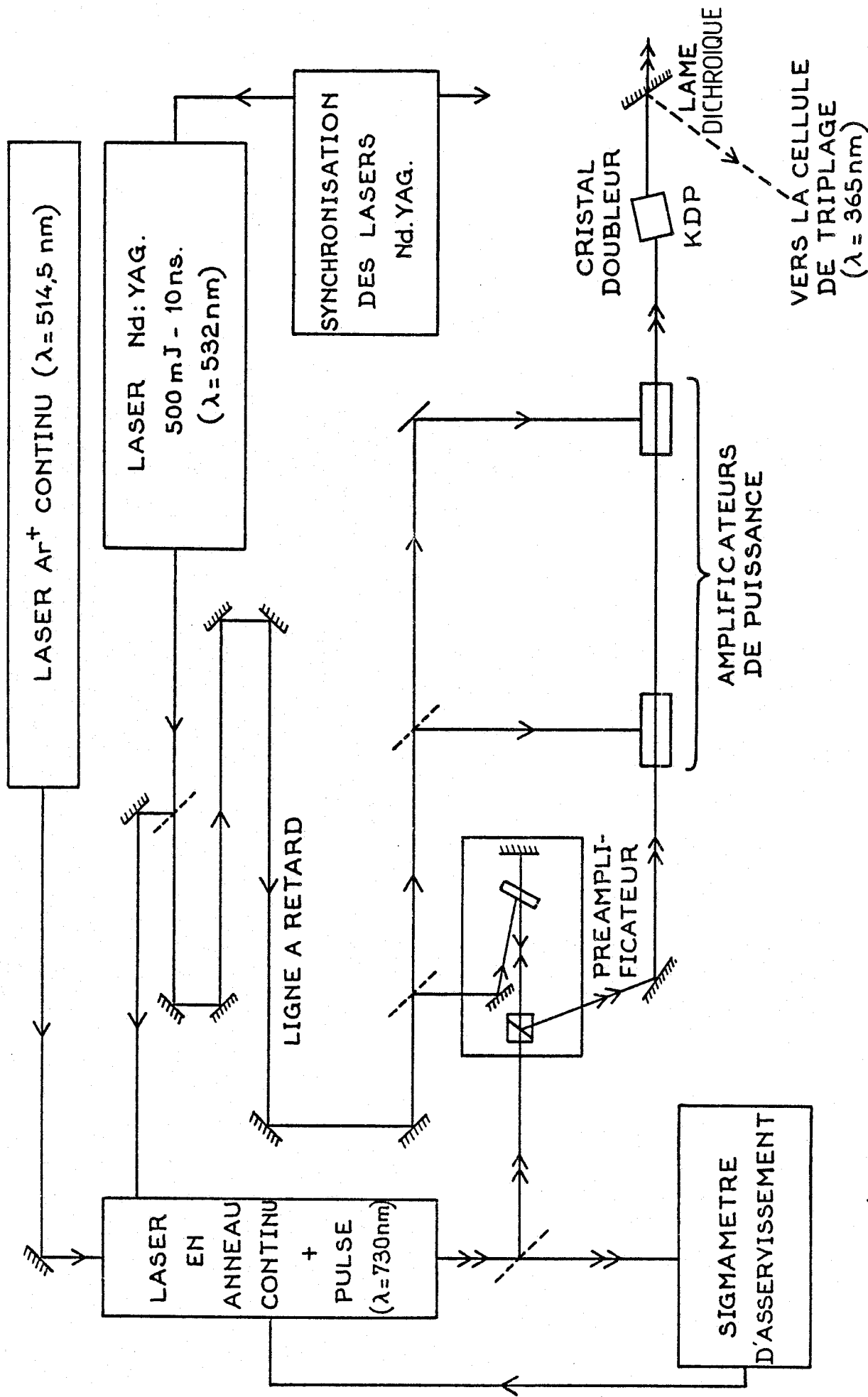


FIGURE 3 schéma d'ensemble de la source laser pulsée monomode et accordable

II.1. DESCRIPTION DU SYSTEME

Le schéma d'ensemble du système laser est présenté figure 3.

Cet ensemble laser présente peu de différences avec celui qui est utilisé sur les expériences menées actuellement sur l'atome de lithium (voir introduction) et qui constitue le deuxième étage d'excitation dans la présente expérience [19-33].

Dans la suite, nous allons décrire en détail toutes les parties de ce montage, c'est-à-dire :

a) **La cavité laser à double excitation** constituant le coeur du système. Nous avons choisi ici une cavité en anneau plutôt qu'une cavité linéaire pour les raisons suivantes :

- L'intensité lumineuse dans une cavité en anneau est beaucoup plus importante que dans une cavité linéaire (10 à 100 fois plus) ce qui, en particulier, améliore le rapport signal sur fond de fluorescence.
- Le fait que le miroir de couplage ne soit pas perpendiculaire au faisceau laser interdit complètement le retour de la fluorescence dans l'axe des amplificateurs.
- L'onde progressive ne passe qu'une fois par tour dans la cellule rajoutée à l'intérieur de la cavité, ce qui réduit les pertes.

C'est donc à l'intérieur de cette cavité qu'est fabriquée l'impulsion laser monomode : impulsion lumineuse dont les propriétés spectrales sont calquées sur celles du rayonnement continu qui existe dans la cavité. D'où les caractéristiques remarquables du système : exceptionnelle finesse spectrale (uniquement limitée par la durée de l'impulsion), grandes souplesse et dynamique de balayage en fréquence, très bonne stabilité.

b) **Le système d'asservissement et de balayage** . C'est un ensemble opto-électronique complexe comprenant essentiellement : un laser hélium-néon bloqué en fréquence, un sigma-mètre asservi sur celui-ci et contrôlant les éléments sélecteurs de la cavité en anneau. La stabilité de cet ensemble détermine la stabilité du système tout entier [34,35].

c) **La chaîne d'amplification et le doublage de fréquence** . Il est évident que pour effectuer le triplage de fréquence avec le maximum d'efficacité, il faut disposer de la plus grande énergie possible. Une chaîne d'amplificateurs composée d'un préamplificateur à double passage et de deux amplificateurs de puissance a donc été réalisée de façon à extraire le maximum d'énergie du laser d'excitation (Nd:YAG doublé en fréquence), à partir de l'impulsion de faible puissance émise par l'oscillateur. Puissance et aussi qualité de faisceau sont les deux atouts majeurs pour réussir un bon rendement de conversion. Il est donc important à ce

stade de préserver autant que possible la structure spatiale TEM_{00} du faisceau tout au long de l'opération d'amplification en ajustant parfaitement les paramètres géométriques.

Le doublage de fréquence est réalisé dans un cristal de KDP dont l'accord de phase est obtenu par rotation du cristal.

d) **Le système de synchronisation des deux étages laser.** Les impulsions lumineuses formant les deux étages d'excitation de l'atome d'hydrogène doivent arriver sur le jet atomique avec un décalage maximum de 2 à 3 ns. On ajuste cette synchronisation en agissant sur le déclenchement des cellules de Pockels des lasers à YAG. Les signaux de déclenchement sont acheminés par fibres optiques pour éviter le parasitage des circuits logiques.

Avant de passer à la description détaillée de tous ces éléments nous allons faire quelques rappels théoriques en lien direct avec certains problèmes du montage expérimental.

<u>Symboles</u>	<u>Définition</u>	<u>Unités</u>
N	Densité de molécules de colorant	(molécules) cm^{-3}
$N_1(x,t)$	Densité de population dans l'état S_1 (au temps t, en x)	"
$N_0(x,t)$	Densité de population dans l'état S_0	"
P(t)	Puissance de pompe au temps t	erg.s^{-1}
S_p	Section du faisceau de pompage	cm^2
S_i	Section du faisceau laser	cm^2
σ_p	Section efficace d'absorption de S_0 à la longueur d'onde de pompage λ_p	cm^2
h	Constante de Planck	erg.s
c	Vitesse de la lumière dans le vide	cm.s^{-1}
n	Indice de réfraction du milieu actif	
τ	Durée de vie du niveau S_1	s
$\sigma_e(\lambda)$	Section efficace d'émission stimulée à λ , $S_1 \rightarrow S_0$	cm^2
$\sigma_a(\lambda)$	Section efficace d'absorption à λ , $S_0 \rightarrow S_1$	cm^2
E(λ)	Spectre de fluorescence normalisé, $S_1 \rightarrow S_0$	cm^{-1}
Φ	Rendement quantique de fluorescence	
I(x,t, λ)	Flux de photons par unité de longueur d'onde, à l'instant t, à l'abscisse x	} (photons) $\text{cm}^{-2}.\text{s}^{-1}$
$I_n(x,t)$	Flux de photons total dans l'intervalle de longueurs d'ondes $[\delta\lambda]_n$, à l'instant t, à l'abscisse x	
g(x)	Facteur géométrique déterminant la fraction d'émission spontanée émise dans l'angle solide correspondant au mode laser [pour un mode gaussien $g \approx \left(\frac{\lambda}{2\pi\omega_0}\right)^2$]	
l	Longueur du milieu amplificateur	cm

Tableau I

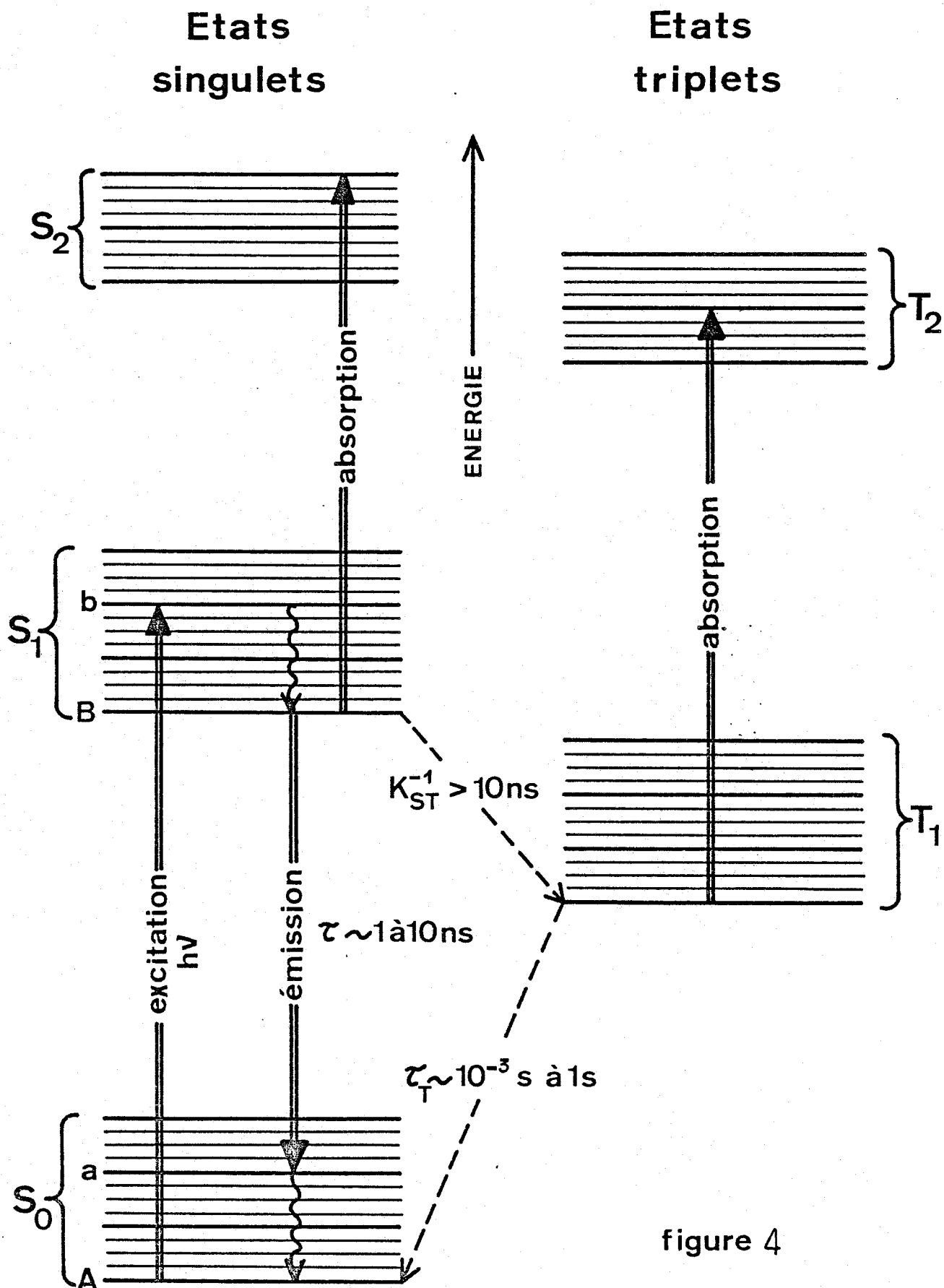


figure 4

REPRESENTATION SCHEMATIQUE DES NIVEAUX D'ENERGIE

D'UNE MOLECULE DE COLORANT

II.2. RAPPELS THEORIQUES

II.2.1. L'amplificateur de rayonnement cohérent dans les systèmes à solution de colorant

A) Considérations théoriques

Dans un milieu amplificateur constitué d'une solution de colorant, les niveaux d'énergie mis en jeu dans la transition laser sont schématisés figure (4). Dans un système impulsionnel où la durée des impulsions est grossièrement inférieure à 50 ns, on peut ne pas tenir compte du transfert de population vers les états triplets car ceux-ci se peuplent très lentement ; en effet, le terme K_{ST} est très faible devant le terme $\frac{1}{\tau}$ (pour la rhodamine 6G $K_{ST} \approx 3,4 \cdot 10^6 \text{ s}^{-1}$ et $\frac{1}{\tau} \approx 1,8 \cdot 10^8 \text{ s}^{-1}$). Nous n'allons donc faire intervenir que les transitions entre les états singulets S_0 et S_1 qui forment des bandes de niveaux extrêmement serrés constituant un quasi continuum. Le laser de pompe peuple un niveau de S_1 à partir du niveau fondamental de S_0 ; une transition non radiative très rapide (10^{-12} s) fait revenir la molécule au niveau inférieur de S_1 . La transition laser a lieu entre ce niveau de S_1 et un niveau de la bande S_0 tel que la longueur d'onde émise soit compatible avec le maximum de la fonction de transmission de la cavité ; une autre transition non radiative ramène la molécule dans son état fondamental ; c'est un système à quatre niveaux [36,37].

Le tableau I résume les notations employées par la

suite. Compte tenu des remarques précédentes, les équations d'évolution des populations et des intensités s'écrivent [38] :

- Evolution des populations :

$$\begin{aligned} \frac{\partial N_1(x,t)}{\partial t} = & \sigma_p I_p(x,t) N_0(x,t) \\ & - N_1(x,t) \int \sigma_e(\lambda) I(x,t,\lambda) d\lambda \\ & + N_0(x,t) \int \sigma_a(\lambda) I(x,t,\lambda) d\lambda \\ & - \frac{1}{\tau} N_1(x,t) \end{aligned} \quad (\text{II.1})$$

$$\text{et } N_0(x,t) + N_1(x,t) = N \quad (\text{II.2})$$

Le premier terme de (II.1) décrit l'excitation de S_0 vers S_1 par le laser de pompe ; le second terme l'effet de l'émission stimulée sur la population N_1 à toutes les longueurs d'ondes ; le troisième terme l'augmentation de N_1 due à l'autoabsorption par les molécules dans l'état fondamental et le quatrième terme la décroissance de N_1 par émission spontanée.

- Evolution des intensités à l'intérieur du milieu amplificateur :

$$\begin{aligned} \frac{d}{dx} [I_n(x,t)] = & N_1(x,t) \sigma_e(\lambda_n) I_n(x,t) \\ & + \frac{N_1(x,t)}{\tau} E(\lambda_n) [\delta\lambda]_n g(x) \\ & - N_0(x,t) \sigma_a(\lambda_n) I_n(x,t) \end{aligned} \quad (\text{II.3})$$

$$\text{et } \frac{d}{dx}[I_p(x,t)] = -N_o(x,t)\sigma_p I_p(x,t) \quad (\text{II.4})$$

Dans (II.3), les termes successifs représentent, dans l'ordre, la contribution de l'émission stimulée, celle de l'émission spontanée dans un angle solide approprié représenté par le terme g , et l'absorption à partir de l'état fondamental. On considère, dans cette relation l'évolution de l'intensité à une longueur d'onde donnée λ_n dans un intervalle $[\delta\lambda]_n$. La formule (II.4) indique la façon dont le faisceau de pompe est atténué en traversant le milieu amplificateur.

Dans les équations d'évolution (II.1) à (II.4), on a tenu compte du fait qu'une solution de colorant est un milieu dont la courbe de gain possède un type d'élargissement homogène : toutes les molécules du colorant contribuent à l'oscillation à une longueur d'onde. Quand le type d'élargissement est inhomogène (laser à gaz par exemple), seules les molécules appartenant à une certaine classe participent à l'oscillation laser et la population $N_{1\lambda}(x,t)$ du niveau excité dépend de la longueur d'onde considérée. Une conséquence du type d'élargissement qui concerne la saturation du gain sera clairement mise en évidence plus loin.

En faisant quelques hypothèses simplificatrices sur les caractéristiques du milieu amplificateur et du faisceau de pompe, nous pouvons décrire assez exactement le comportement d'un amplificateur laser. Ces hypothèses sont les suivantes :

- Le faisceau de pompe a une répartition uniforme d'intensité sur toute sa surface.

- L'impulsion de pompe est un créneau dont la durée peut être ajustée à volonté.

- Le milieu amplificateur est une solution de colorant dont la concentration n'est pas trop importante pour qu'on puisse considérer que l'excitation est uniforme dans tout le volume interagissant avec le faisceau à amplifier (ce qui est à peu près vérifié avec une excitation transversale).

Moyennant ces conditions, on recherche l'état stationnaire qui s'établit lorsqu'on injecte à l'entrée de l'amplificateur un signal d'intensité I_{oi} à la longueur d'onde λ_i , notablement supérieure à l'intensité à toutes les autres longueurs d'ondes.

A partir de (II.1), l'état stationnaire, à un endroit x du milieu, est décrit par la relation $\frac{\partial N_1(x)}{\partial t} = 0$

$$\text{soit } \sigma_p I_p N_o(x) - \sigma_{ei} I_i(x) N_1(x) + \sigma_{ai} I_i(x) N_o(x) - \frac{N_1(x)}{\tau} = 0 \quad (\text{II.5})$$

Par ailleurs, l'évolution à l'intérieur du milieu amplificateur est donnée par :

$$\frac{dI_i(x)}{dx} = \sigma_{ei} I_i(x) N_1(x) - \sigma_{ai} I_i(x) N_o(x) \quad (\text{II.6})$$

On a négligé ici le terme $\frac{N_1(x)}{\tau} E(\lambda_i) [\delta\lambda]_i g(x)$ parce qu'on considère que l'intensité injectée à la longueur d'onde λ_i est très supérieure à l'intensité d'émission spontanée

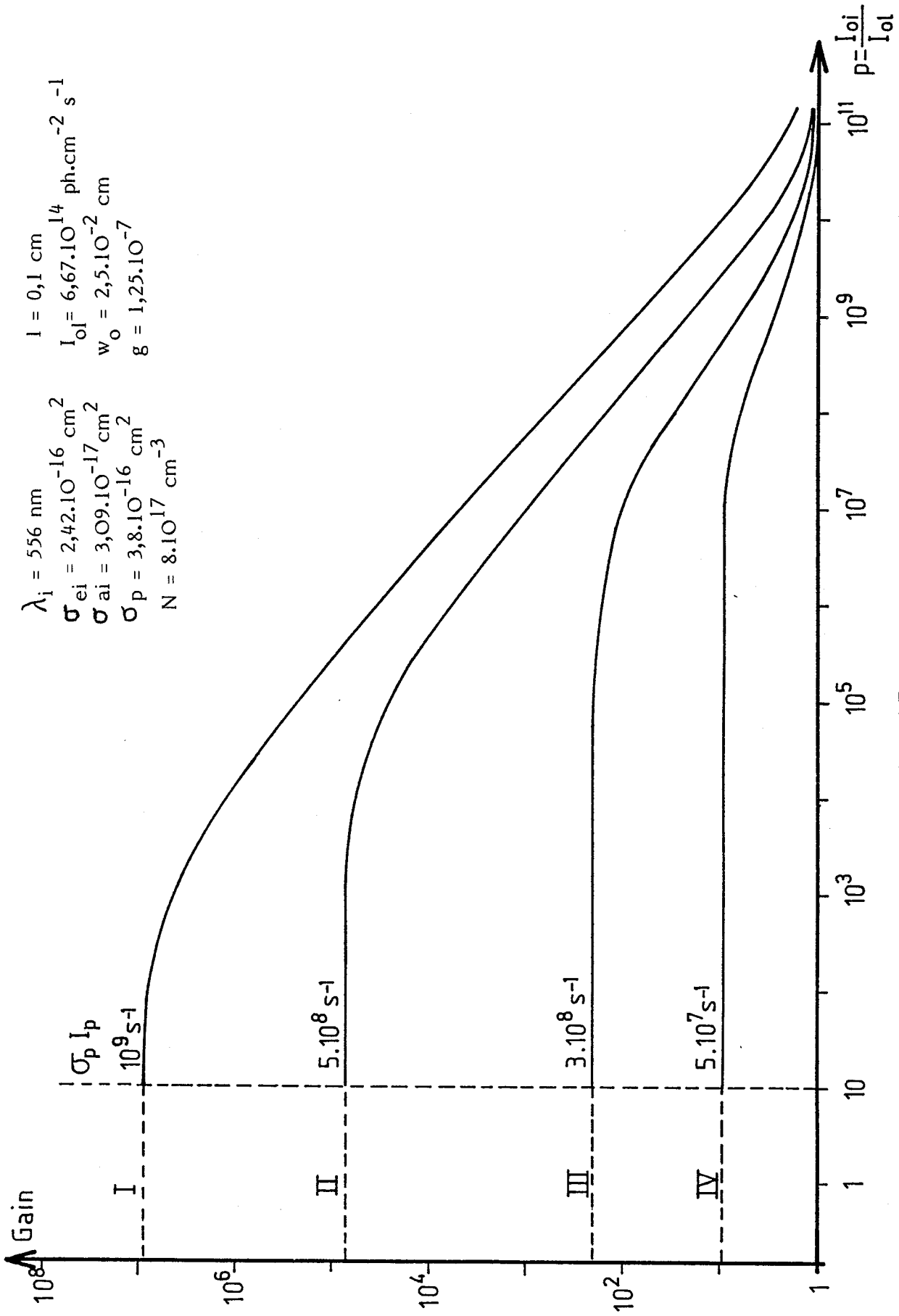


FIGURE 5

à la même longueur d'onde dans le même mode spatial.

De (II.2) et (II.6) on tire :

$$N_o(x) = \frac{N\sigma_{ei} - \frac{1}{I_i(x)} \cdot \frac{dI_i(x)}{dx}}{\sigma_{ei} + \sigma_{ai}} \quad (\text{II.7})$$

En reportant dans (II.5), on en déduit l'équation différentielle :

$$\left(\sigma_p I_p + \frac{1}{\tau}\right) \frac{dI_i(x)}{I_i(x)} + (\sigma_{ei} + \sigma_{ai}) dI_i(x) = N(\sigma_{ei} \sigma_p I_p - \frac{\sigma_{ai}}{\tau}) dx \quad (\text{II.8})$$

Cette équation s'intègre (avec $0 < x < l$) pour donner l'intensité I_i en sortie de l'amplificateur en fonction de l'intensité à l'entrée I_{oi} , soit :

$$\left(\sigma_p I_p + \frac{1}{\tau}\right) \left(\text{Log} \frac{I_i}{I_{oi}}\right) + (\sigma_{ei} + \sigma_{ai}) (I_i - I_{oi}) = Nl \left(\sigma_{ei} \sigma_p I_p - \frac{\sigma_{ai}}{\tau}\right) \quad (\text{II.9})$$

Le gain G_i de l'amplificateur à la longueur d'onde λ_i est défini par :

$$I_i = G_i I_{oi} \quad (\text{II.9a})$$

On obtient donc finalement la relation suivante entre l'intensité à l'entrée et le gain de l'amplificateur à une intensité de pompage I_p donnée :

$$\left(\sigma_p I_p + \frac{1}{\tau}\right) \text{Log} G_i + (\sigma_{ei} + \sigma_{ai}) (G_i - 1) I_{oi} = Nl \left(\sigma_{ei} \sigma_p I_p - \frac{\sigma_{ai}}{\tau}\right) \quad (\text{II.10})$$

La figure (5) indique quelques courbes donnant le gain en fonction de l'intensité I_{oi} (ou de $p = \frac{I_{oi}}{I_{ol}}$), pour différentes valeurs de l'intensité de pompage. Ces courbes ont été tracées à l'aide de la relation (II.10) pour la rhodamine 6G au maximum de la courbe de fluorescence ($\lambda_i = 556 \text{ nm}$).

Le comportement de l'amplificateur est gouverné par la population N_1 de l'état excité. A partir de II.2 et II.5 la proportion de molécules dans l'état excité par rapport à la concentration du colorant s'écrit :

$$\frac{N_1}{N} = \frac{\sigma_p I_p + I_i \sigma_{ai}}{\sigma_p I_p + \frac{1}{\tau} + I_i (\sigma_{ei} + \sigma_{ai})} \quad (\text{II.11})$$

a) Lorsque l'intensité circulant dans l'amplificateur est très faible, l'inversion de population tend vers une valeur maximum qui est donnée par :

$$\left(\frac{N_1}{N}\right)_{\max} = \frac{\sigma_p I_p}{\sigma_p I_p + \frac{1}{\tau}} \quad (\text{II.12})$$

ceci si $I_{o\ell} < I_{oi} \ll \frac{\sigma_p I_p + \frac{1}{\tau}}{\sigma_{ei} + \sigma_{ai}}$

L'intensité $I_{o\ell}$ est définie de la façon suivante. Supposons que le milieu amplificateur soit excité sans signal d'entrée ; l'intensité de fluorescence dans la première tranche de l'amplificateur prend une valeur élevée sur une très courte distance, c'est-à-dire que le taux d'émission stimulée va dépasser le taux d'émission spontanée. Dans le reste de l'amplificateur, la population N_1 est donc essentiellement déterminée par l'émission stimulée. Dans ces conditions, l'intensité de fluorescence $I_{o\ell}$, pour laquelle le taux d'émission stimulée est égal au taux d'émission spontanée dans le même mode spatial peut être prise comme intensité de référence : tout signal d'entrée d'intensité inférieure à $I_{o\ell}$ ne va pas modifier l'intensité de la fluorescence en

sortie de l'amplificateur. Ceci se traduit, à partir de la relation (II.3) par :

$$N_1(x,t)\sigma_e(\lambda_\ell)I_{o\ell} = \frac{N_1(x,t)}{\tau} E(\lambda_\ell)[\delta\lambda]_\ell g(x)$$

Par ailleurs, la section efficace d'émission stimulée est définie par :

$$\sigma_e(\lambda) = \frac{\lambda^4 E(\lambda)}{8\pi c n^2 \tau}$$

Donc

$$I_{o\ell} = \frac{8\pi n^2 c g(x)}{\lambda_\ell^4} [\delta\lambda]_\ell \quad (\text{II.13})$$

Défini de cette façon, $I_{o\ell}$ ne dépend pas du gain du milieu, il est seulement déterminé par les paramètres géométriques et spectraux.

Dans les conditions de faible signal, le gain est constant (fig. 5) et s'exprime alors simplement par l'expression :

$$G_i \approx \exp\left[\frac{N\ell(\tau\sigma_{ei}\sigma_p I_p - \sigma_{ai})}{\tau\sigma_p I_p + 1}\right] \quad (\text{II.14})$$

b) Lorsque l'intensité circulant dans l'amplificateur est au contraire très importante, l'inversion de population tend vers une valeur minimum, non nulle (due à la présence de I_i) :

$$\left(\frac{N_1}{N}\right)_{\min} = \frac{\sigma_{ai}}{\sigma_{ei} + \sigma_{ai}} \quad (\text{II.15})$$

Ceci à condition que $I_i \gg \frac{\sigma_p I_p}{\sigma_{ai}}$

Cette situation correspond à la **saturation du gain** de l'amplificateur. La saturation est totale quand le gain est proche de l'unité. Le gain est alors donné par : (de II.10)

$$G_i \approx \frac{N\ell}{I_{oi}} \left[\frac{\sigma_{ei} \sigma_p I_p - \frac{\sigma_{ai}}{\tau}}{\sigma_{ei} + \sigma_{ai}} \right] + 1 \quad (\text{II.16})$$

La saturation commence en fait, dès que la courbe de gain décroît et il existe une zone intermédiaire où le gain suit une loi de la forme :

$$G_i \approx \frac{A_o}{I_{oi}} \quad \text{où } A_o \text{ est une constante} \quad (\text{II.17})$$

B) Considérations de rapport signal sur bruit

Il s'agit d'évaluer à la sortie du milieu amplificateur la proportion de l'intensité I_i émise à la longueur d'onde λ_i (signal) par rapport à l'intensité I_ℓ émise à toutes les autres longueurs d'ondes pouvant être émises dans le même mode spatial par le colorant (bruit). Ce bruit, qui est de l'émission spontanée, a un niveau nul à l'entrée de l'amplificateur, mais il atteint très rapidement un niveau tel que le taux d'émission stimulée qu'il provoque dépasse le taux d'émission spontanée. C'est le niveau d'intensité $I_{o\ell}$ que nous avons défini plus haut et qui donne en sortie de l'amplificateur l'intensité du fond de fluorescence I_ℓ .

Dans une solution de colorant, où la courbe de gain a un type d'élargissement homogène, le gain : $G_i(\lambda_i, I_p, \Sigma I_n)$ est

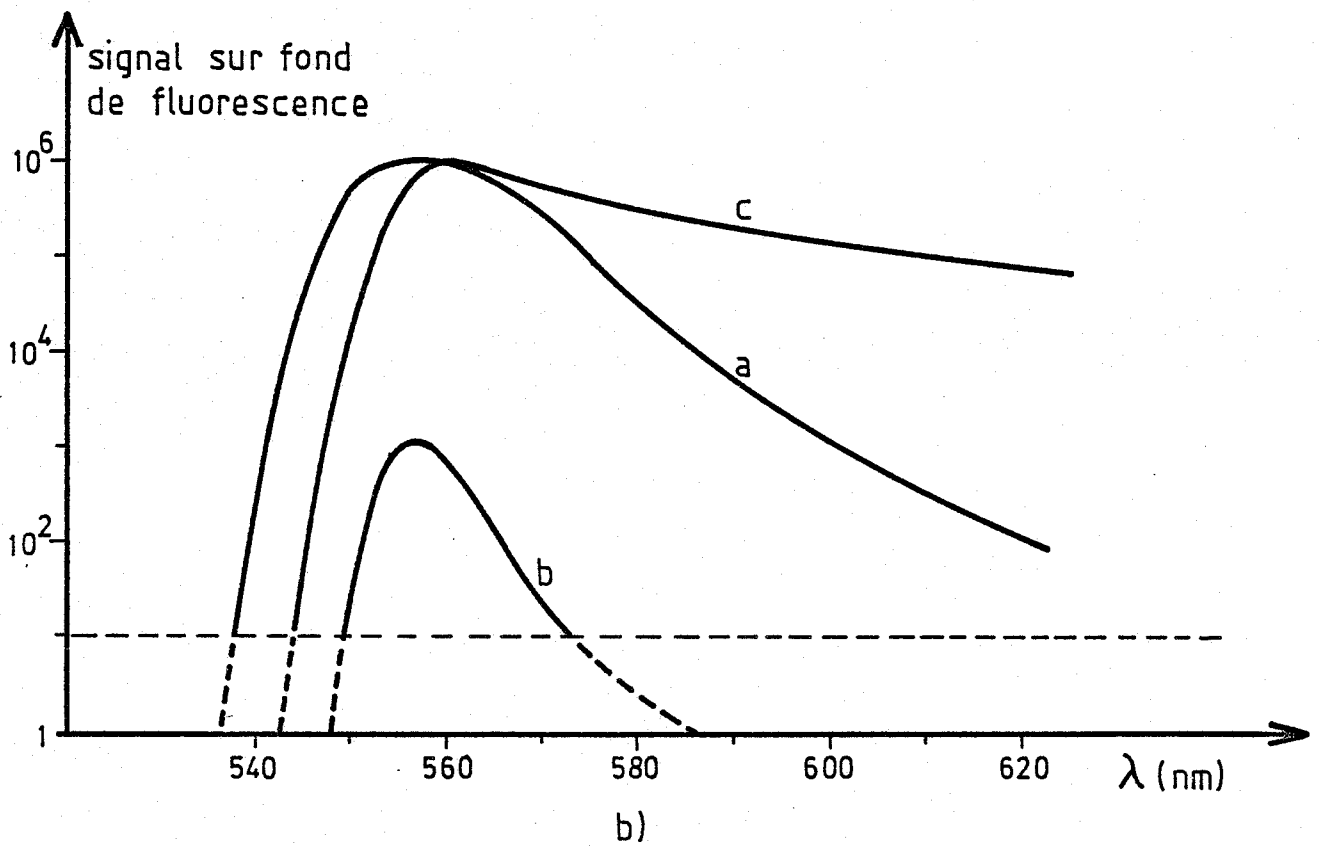
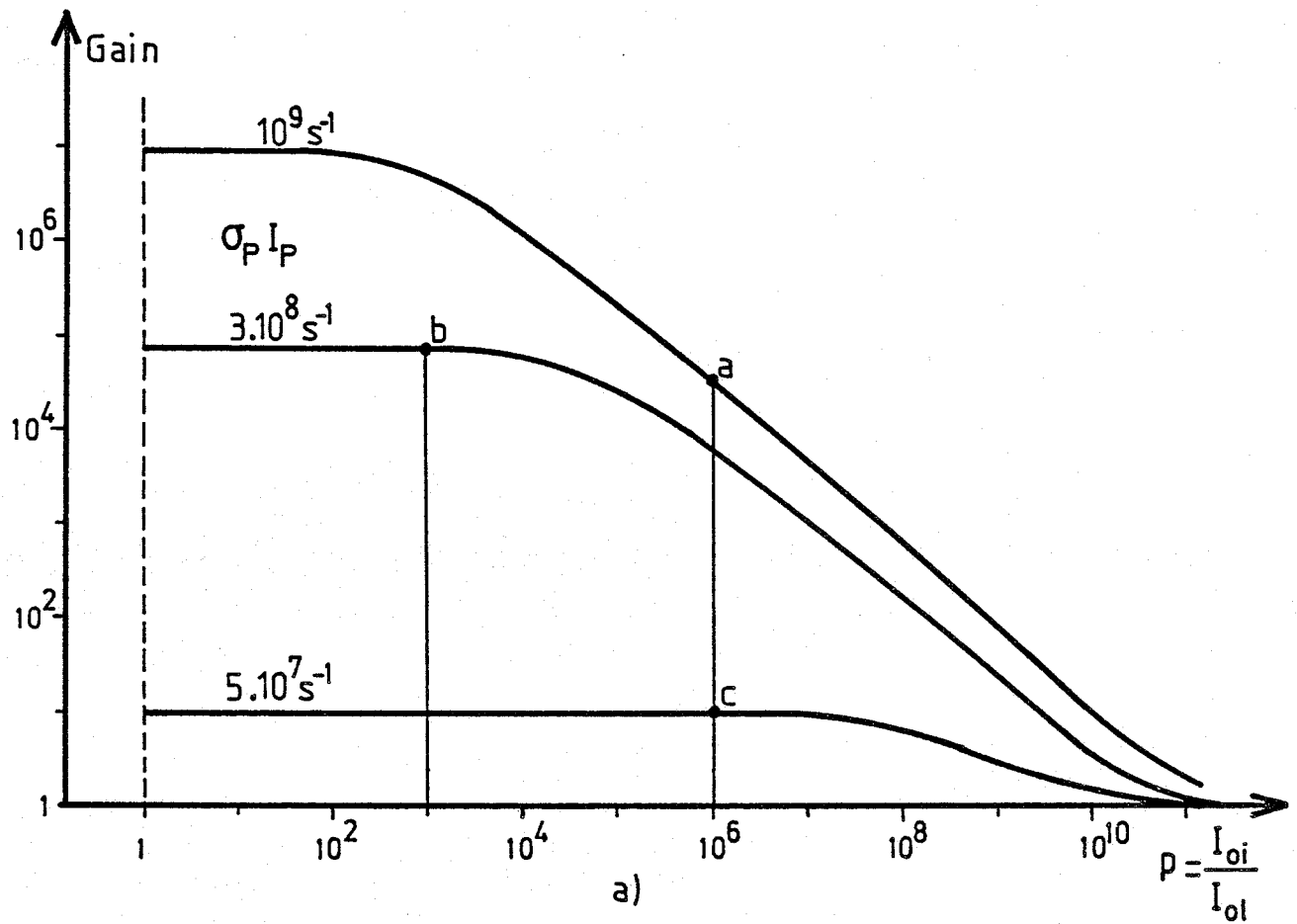


FIGURE 6

fonction de la longueur d'onde, du taux de pompage et de l'intensité lumineuse totale qui circule dans le milieu amplificateur. Cependant, comme l'intensité I_{oi} (signal d'entrée) est généralement beaucoup plus élevée que $I_{o\ell}$, dans des conditions de pompage déterminées, c'est bien I_{oi} qui détermine l'inversion de population dans le milieu et le gain G_i n'est que peu affecté par l'émission spontanée amplifiée.

Le rapport signal sur bruit est alors décrit par :

$$S/B = \frac{I_i}{I_\ell} = \frac{G_i I_{oi}}{G_\ell I_{o\ell}}$$

où G_i et G_ℓ sont les gains respectifs à la longueur d'onde λ_i et sur la bande de fluorescence $[\delta\lambda]_\ell$, qui ne dépendent donc que de ces longueurs d'onde et de I_{oi} .

Si la longueur d'onde λ_i est située au maximum de la bande de fluorescence, $G_i \approx G_\ell$, et le rapport signal sur bruit vaut $I_{oi}/I_{o\ell}$ quel que soit le taux de pompage.

Si, au contraire, la longueur d'onde λ_i est éloignée du maximum de la bande de fluorescence, le gain G_ℓ est toujours imposé par le gain G_i mais $G_\ell > G_i$, et le rapport signal sur bruit est moins bon. Pour fixer les idées, nous allons nous placer dans trois cas particuliers (illustrés par la figure 6), pour lesquels nous avons calculé S/B, sur toute la bande d'émission de la rhodamine 6G, à l'aide de la relation (II.10).

1. Taux de pompage faible, signal d'entrée élevé (courbe c). Le point de fonctionnement de l'amplificateur pour la longueur d'onde λ_i se situe dans la partie constante de la courbe de gain (6.a), le gain G_i peut alors s'exprimer par la forme (II.14). Mises à part les zones de longueurs d'ondes extrêmes de la bande de fluorescence, le rapport signal sur bruit reste très bon, mais évidemment, le gain est faible.

2. Taux de pompage élevé, signal élevé (courbe a). Dans ce cas, le point de fonctionnement de l'amplificateur pour la longueur d'onde λ_i se situe dans la partie décroissante de la courbe de gain. Le gain G_0 pouvant être beaucoup plus important que le gain G_i , le rapport S/B est en général plus faible que dans la situation 1-, mais le gain plus élevé.

3. Taux de pompage élevé, signal faible (courbe b). Cette situation restreint sérieusement la bande de longueurs d'ondes sur laquelle le rapport S/B est correct : le bruit d'émission spontanée est amplifié préférentiellement au signal.

Ces trois cas ne tiennent compte que de l'émission de fluorescence dans le mode spatial du signal et supposent un signal pur (c'est-à-dire lui-même exempt de fond de fluorescence). Dans la réalité, si on place plusieurs amplificateurs successifs, il est évident que les caractéristiques du

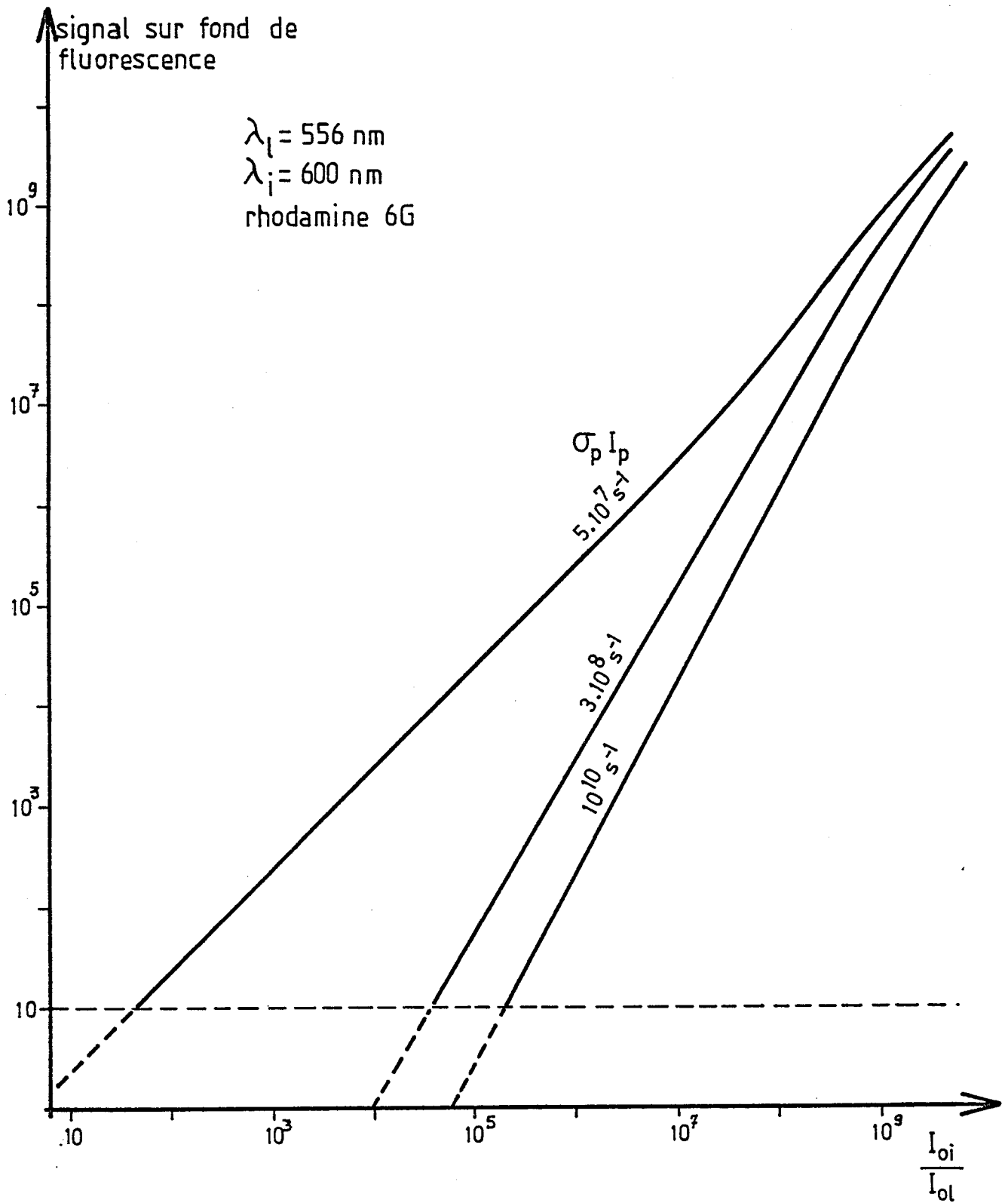


FIGURE 7

rapport S/B se dégradent à chaque amplification. Pour s'affranchir de la fluorescence on peut soit faire un filtrage spatial après dispersion entre chaque amplificateur, soit placer les amplificateurs assez loin les uns des autres (la fluorescence diverge beaucoup plus que l'émission laser).

Enfin, si nous nous plaçons à une longueur d'onde fixe assez éloignée de la longueur d'onde λ_l , l'évolution du rapport signal sur bruit est indiquée figure 7 en fonction de l'intensité d'entrée pour différentes valeurs du taux de pompage.

Nous allons examiner la façon dont on peut optimiser le fonctionnement d'un amplificateur laser.

C) Le fonctionnement optimal d'un amplificateur laser

Suivant l'intensité du signal qui entre dans l'amplificateur, on peut distinguer grossièrement deux catégories d'amplificateurs.

α) L'amplificateur adapté à un signal de faible intensité. Sa qualité première est de donner un gain élevé sans augmenter de façon considérable le rapport signal sur bruit ; ces deux éléments ne sont pas forcément conciliables si on travaille à une longueur d'onde éloignée du maximum de l'émission spontanée. Une telle situation est mise en évidence sur la figure 7. On a calculé le rapport S/B pour différents taux de pompage à la longueur d'onde de 600 nm pour la

rhodamine 6G. Si on dispose par exemple d'un signal d'entrée de $10^5 I_{0\lambda}$, avec un faible taux de pompage ($5 \cdot 10^7 \text{ s}^{-1}$) on conserve un excellent rapport S/B, supérieur à 10^4 , tandis qu'à des taux de pompage plus élevés, le fond de fluorescence prend une importance intolérable. Par conséquent, dans la mesure où les gains G_i et G_λ sont très différents (la longueur d'onde λ_i est éloignée du maximum de la fluorescence) il est nécessaire d'exciter modérément un amplificateur dont le signal d'entrée est de faible intensité.

β) L'amplificateur adapté à un signal de forte intensité. Il s'agit plutôt de tirer parti de l'énergie emmagasinée par le colorant, même s'il en résulte un gain faible. Si on se limite à la partie constante de la courbe de gain, cela signifie qu'on ne dépeuple pas l'état excité ; au contraire, en utilisant la partie basse de la courbe, on est certain de dépeupler fortement l'état excité et de drainer l'énergie accumulée dans l'amplificateur. Donc l'amplificateur fonctionne en saturation totale et le rapport S/B est toujours excellent même lorsque λ_i et λ_λ sont très différents (ceci est clair sur les figures 6 et 7).

γ) Elimination du fond de fluorescence. Le fond de fluorescence à la sortie d'un amplificateur peut avoir trois origines :

- amplification d'un fond déjà superposé au signal d'entrée.

- mauvaise adaptation du taux de pompage compte-tenu du signal d'entrée (paragraphe α).

- mauvais recouvrement du faisceau d'excitation et du faisceau de signal.

Dans tous les cas il est possible de diminuer très fortement l'intensité de la fluorescence en pratiquant une dispersion de la fluorescence puis un filtrage spatial avant et après chaque amplificateur. Cette méthode, un peu lourde, n'est justifiée que lorsqu'on ne peut pas bien adapter les intensités de pompage ou qu'on dispose de faisceaux de faible intensité. Dans la pratique, il suffit en général de laisser un écart suffisant entre les amplificateurs. Le rapport signal sur bruit est toujours limité par l'adaptation géométrique des faisceaux de pompe et de signal qui n'est jamais parfaite.

δ) Optimisation du rendement de conversion en énergie.

Dans le but d'extraire le maximum d'énergie de l'amplificateur, il est inutile de concentrer l'énergie d'excitation dans un volume trop restreint. En effet, si la population est transférée en grande partie dans l'état excité, il n'est plus possible d'augmenter l'énergie en sortie même en augmentant le taux de pompage. Il est préférable au contraire d'accroître le volume excité de façon à atteindre davantage de molécules. On peut définir le rendement de conversion en énergie comme le rapport de l'accroissement de l'énergie à la longueur d'onde λ_1 , à l'énergie de pompe :

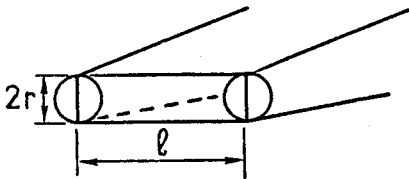
$$R = \frac{E_i - E_{oi}}{E_p}$$

C'est généralement l'énergie qui est directement mesurable. L'énergie est définie en fonction de l'intensité par :

$$E_i = I_i h\nu_i \Delta t S_i$$

où Δt est la durée de l'impulsion et S_i la section du faisceau. Donc :

$$R = \frac{(I_i - I_{oi})}{I_p} \frac{\nu_i S_i}{\nu_p S_p} = (G_i - 1) \frac{I_{oi}}{I_p} \frac{\nu_i S_i}{\nu_p S_p}$$



Dans le cas d'une excitation transversale, on s'arrange pour que le faisceau de pompe et le faisceau amplifié engendrent un volume identique,

on a donc : $S_i = \pi r^2$ et $S_p = 2r\ell$.

D'autre part, lorsque le niveau d'entrée est élevé, le gain est décrit par la relation II.16, d'où :

$$R = \frac{\pi r \nu_i N}{2 \nu_p} \left[\frac{\sigma_{ei} \sigma_p \bar{I}_p - \frac{\sigma_{ai}}{\tau}}{I_p (\sigma_{ei} + \sigma_{ai})} \right]$$

On conçoit bien que le rendement, qui est proportionnel à N , ne puisse pas augmenter par le simple fait de concentrer davantage la solution ; quand la concentration augmente trop, le faisceau est absorbé sur l'avant de la cellule et la section S_i considérée plus haut diminue. La façon la plus réaliste d'évaluer le rendement, c'est de prendre en considération la valeur moyenne de I_p sur la section S_i du faisceau à amplifier. L'intensité du faisceau de pompe à

l'intérieur du colorant est donnée par :

$$I_p(x) = I_p e^{-N_0(x)\sigma_p x}$$

D'où la valeur moyenne :

$$\bar{I}_p = \frac{I_p}{2rN_0\sigma_p} \left(1 - e^{-2rN_0\sigma_p} \right).$$

Dans les conditions où nous sommes (saturation de l'amplification), le niveau excité est fortement dépeuplé, sa population est donnée approximativement par la relation (II.15), donc $N_0 \approx \frac{N\sigma_{ei}}{\sigma_{ei} + \sigma_{ai}}$.

On peut supposer par ailleurs que dans ces mêmes conditions, N_0 est sensiblement constant sur toute la section S_i . Par conséquent, la relation donnant le rendement est en définitive :

$$R = P \frac{\pi r v_i N}{2v_p} \left[\frac{1}{2rN} \left(1 - e^{-\frac{2r\sigma_p N\sigma_{ei}}{\sigma_{ei} + \sigma_{ai}}} \right) - \frac{\sigma_{ai}}{\tau I_p (\sigma_{ei} + \sigma_{ai})} \right] \quad (\text{II.18})$$

où P est un facteur de perte dû au non recouvrement des volumes engendrés par les faisceaux de pompe et signal. Dans un amplificateur à excitation transversale, on a $P \leq \frac{\pi}{4}$ compte tenu de la géométrie des faisceaux.

Si le signal d'entrée est faible, le rendement est toujours moins élevé que dans une situation de saturation du gain. Ces deux situations sont illustrées par la figure 8a. La zone hachurée correspond donc au rendement accessible en fonction du taux de pompage et de l'intensité moyenne qui circule dans l'amplificateur.

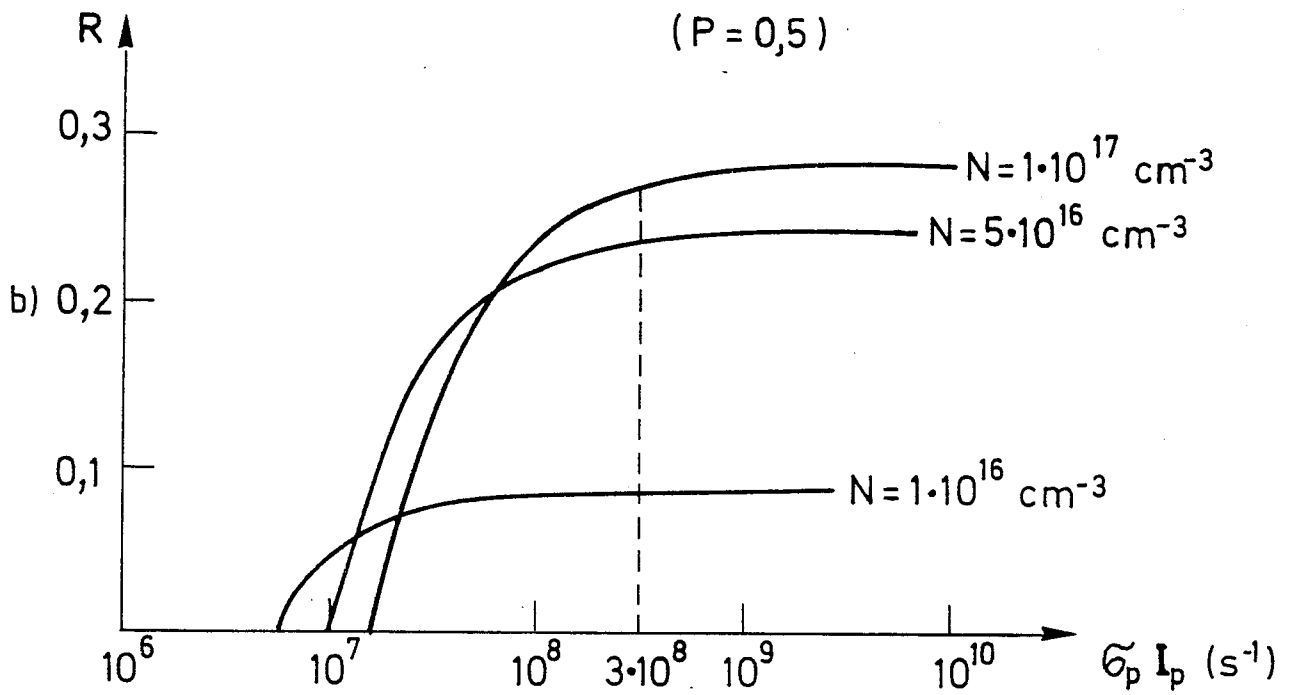
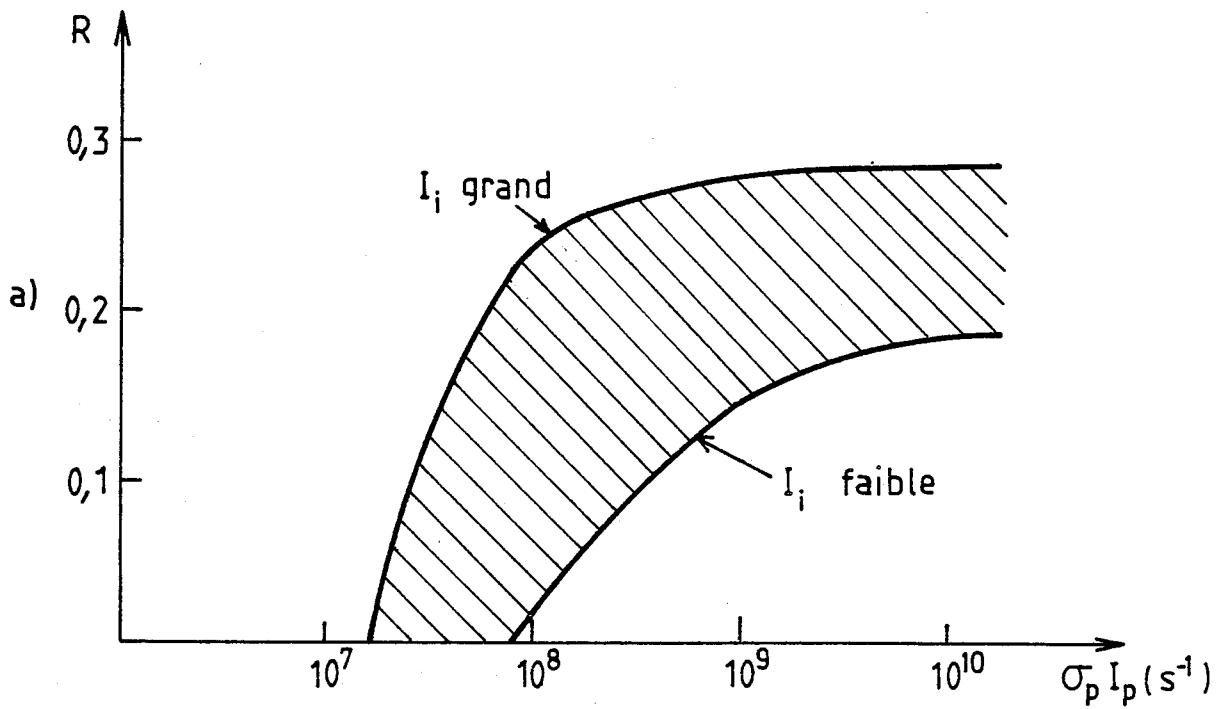


FIGURE 8

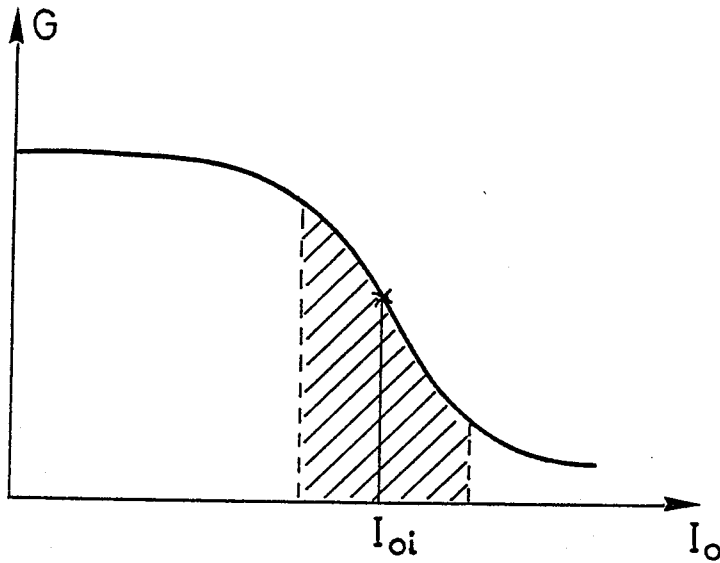
Lorsqu'on se trouve dans une situation de faible intensité de signal et de taux de pompage tel qu'on sature le rendement, il est possible, en étalant le faisceau de pompe sur un plus grand volume de colorant, d'augmenter le rendement global de l'amplificateur. En effet, à la sortie d'un amplificateur de longueur l , on se trouve dans des conditions où l'intensité de signal est importante et le fait d'ajouter une longueur supplémentaire (où le rendement sera supérieur au rendement moyen de la partie précédente) revient à augmenter le rendement global.

Au contraire, on ne peut pas obtenir d'augmentation effective du rendement dans des conditions de fort signal d'entrée (saturation du gain), même en augmentant le volume excité, car on atteint le rendement maximum possible.

Sur la figure 8b, les courbes de rendement dessinées ont été calculées pour diverses valeurs de la concentration, dans des conditions de saturation du gain, indiquant ainsi les valeurs maximales possibles du rendement dans une configuration donnée. On remarque que le seuil d'intensité de pompage est plus faible aux faibles concentrations : lorsque l'absorption est moins importante, la condition d'amplification : $N_1 \sigma_{ei} - N_0 \sigma_{ai} = 0$, qui peut s'écrire aussi

$$N_1 = N_0 \left(\frac{\sigma_{ai}}{\sigma_{ei} + \sigma_{ai}} \right), \text{ est plus facilement réalisée.}$$

n) Stabilisation du signal de sortie. Il est possible de stabiliser le signal de sortie d'un amplificateur en profitant de la région où le gain est décrit par une loi de la



forme $G_i = \frac{A_o}{I_{oi}}$ (gain saturé).

Le signal de sortie :

$$I_i = G_i I_{oi} = A_o$$

est insensible aux variations du signal d'entrée.

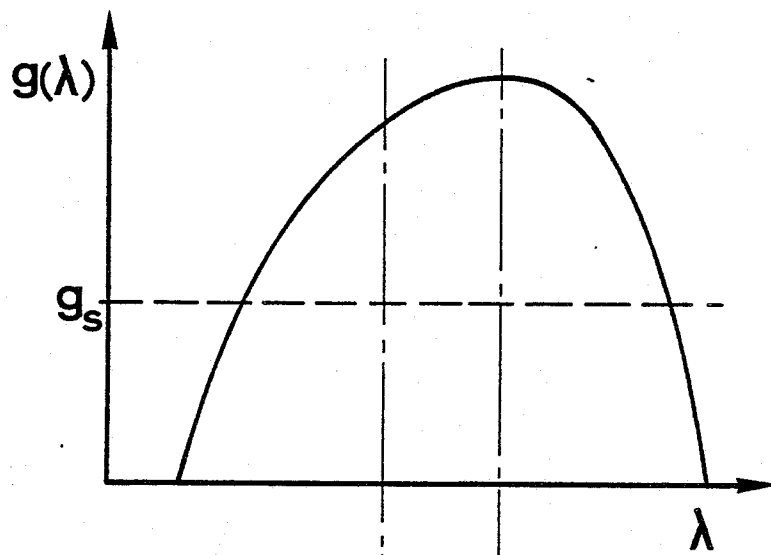
II.2.2. Rappels sur le comportement d'une cavité laser en mode injecté

A) Etude qualitative

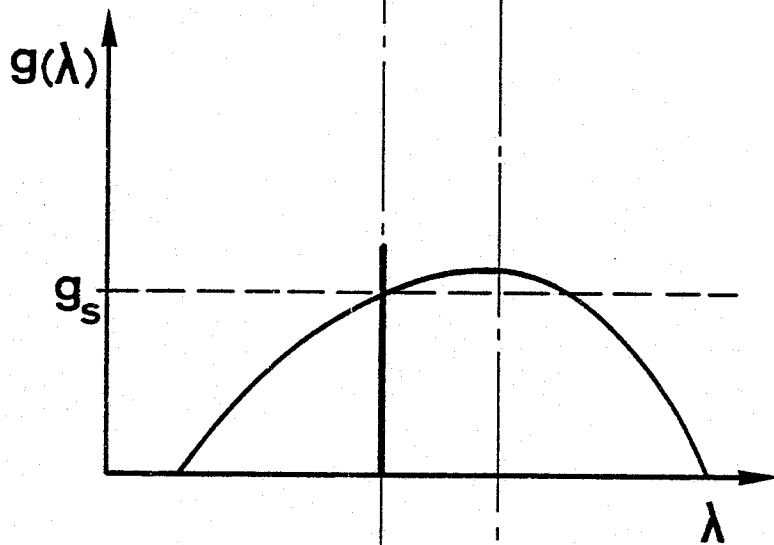
Nous allons envisager ici le cas d'une cavité en anneau à l'intérieur de laquelle se trouve un milieu amplificateur à type d'élargissement homogène soumis à la fois à un rayonnement monochromatique très fin spectralement et de faible puissance (rayonnement injecté à la longueur d'onde λ_i) et à un rayonnement de forte puissance plus large spectralement que le précédent (rayonnement de pompe à la longueur d'onde λ_p).

Pour se rapprocher le plus possible de la cavité que nous utilisons, nous considérons que le rayonnement injecté est continu et que le rayonnement de pompe est impulsionnel.

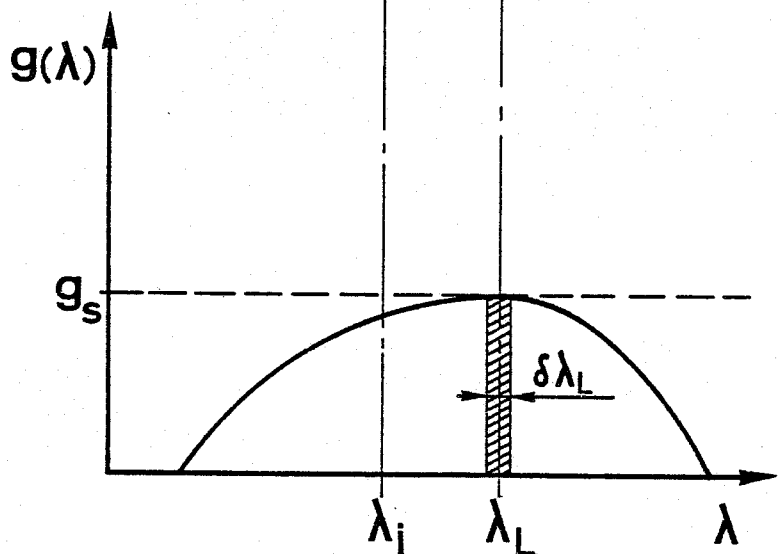
Pour décrire qualitativement le comportement d'une telle cavité, prenons deux cas extrêmes :



a. régime transitoire
sans oscillation laser



b. état intermédiaire
oscillation à λ_i



c. état final
oscillation à λ_L

figure 9 évolution du gain dans une cavité laser soumise à un régime d'oscillations forcées à λ_i (a,b,c se réfèrent à la figure 10)

1) Cas où le rayonnement injecté a une puissance nulle (ou du même ordre de grandeur que le bruit d'émission spontanée dans le milieu amplificateur, lorsqu'il est excité). Ce cas est décrit figure (9) ; la courbe de gain a) correspond au moment où l'impulsion de pompe venant d'être brusquement initiée, l'oscillation laser n'est pas encore établie dans la cavité. Le gain au maximum de cette courbe peut atteindre des valeurs considérables puisque l'inversion de population entre les niveaux donnant lieu à l'oscillation laser peut être presque totale. L'émission laser va se former à partir du bruit d'émission spontanée et préférentiellement là où celui-ci est maximum c'est-à-dire au sommet de la courbe de gain ; soit λ_{ρ} la longueur d'onde qui y correspond. Le milieu amplificateur ayant un type d'élargissement homogène, toutes les molécules du milieu vont contribuer à l'oscillation à λ_{ρ} (plus exactement à l'intérieur d'une certaine bande de longueurs d'ondes $[\delta\lambda]_{\rho}$ s'il n'y a pas d'éléments sélecteurs dans la cavité). Au cours des multiples passages dans la cavité et à cause du phénomène de saturation, la courbe de gain va globalement s'abaisser jusqu'à ce que le maximum de cette courbe coïncide avec le gain au seuil d'oscillation laser g_s . Un état quasi-stationnaire est atteint dans ces conditions jusqu'à la fin de l'impulsion de pompe. (courbe c).

2) Cas où le rayonnement injecté a une puissance beaucoup plus importante que le bruit d'émission spontanée. Tout

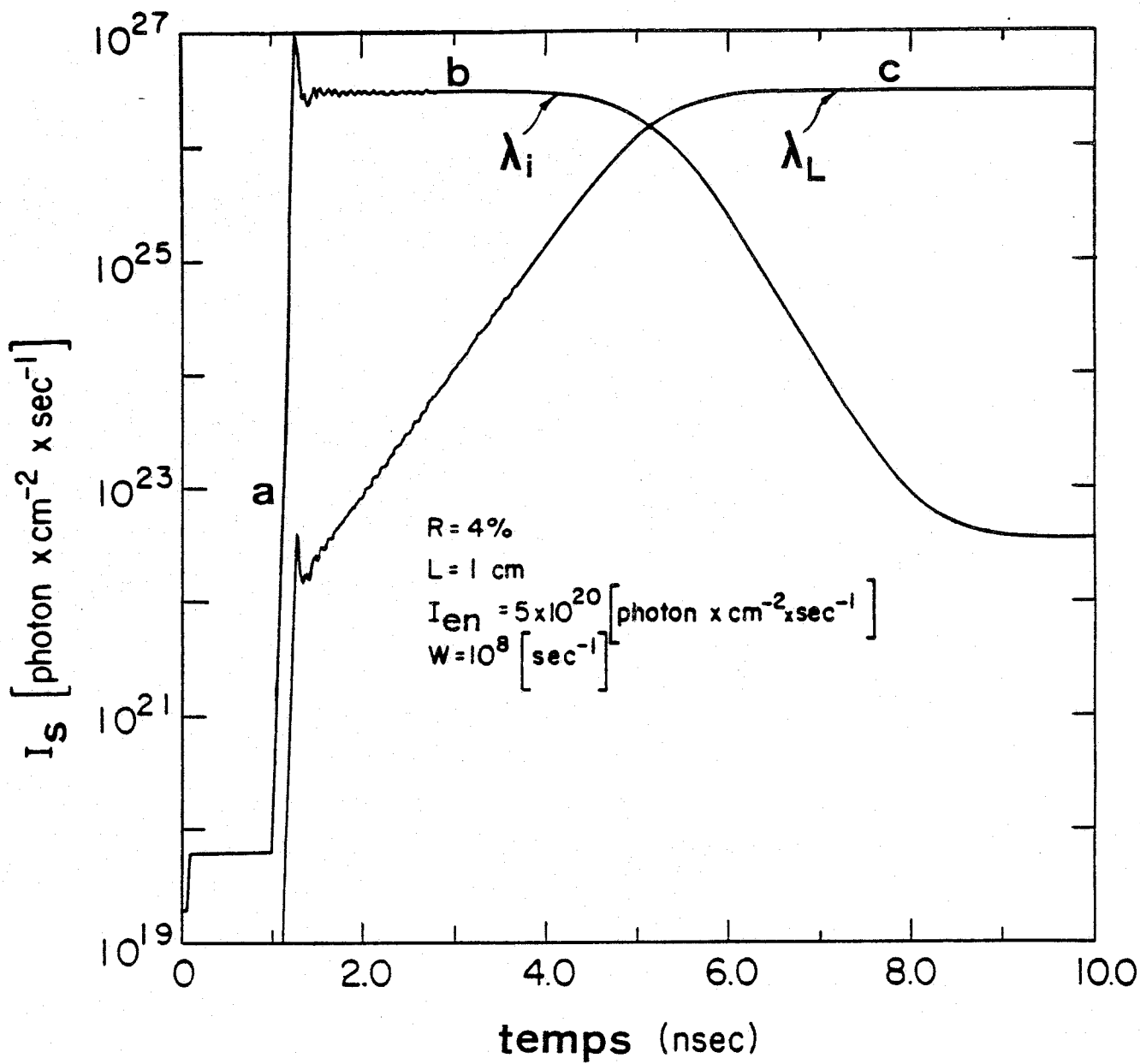


figure 10 [39]

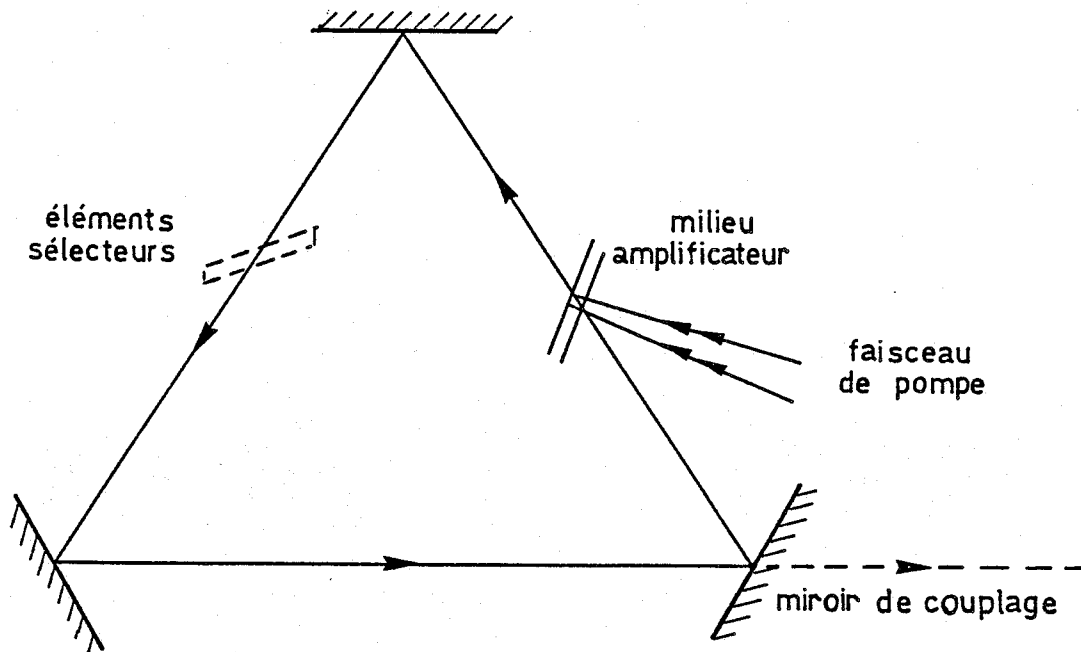
au début de l'impulsion de pompe, le gain évolue de la même façon que ci-dessus (courbe a). Mais, dans cette nouvelle situation, le rayonnement à la longueur d'onde λ_i étant beaucoup plus intense que le bruit d'émission spontanée à n'importe quelle autre longueur d'onde, l'oscillation laser va s'établir préférentiellement, et exactement, à cette longueur d'onde. Il faut noter que la courbe de gain va s'abaisser jusqu'au point qui correspond à g_s à la longueur d'onde λ_i (courbe b) ; un premier état quasi stationnaire existe donc à cette longueur d'onde. Cependant, le gain étant toujours plus important à la longueur d'onde λ_l , l'intensité du rayonnement à cette longueur d'onde peut croître jusqu'à atteindre et dépasser l'intensité à λ_i . Finalement, à condition que l'impulsion de pompe soit suffisamment longue, on atteint un état final identique à l'état final précédent c).

La figure (10) décrit ces deux états d'oscillation dans le cas 2) de façon très explicite ; les calculs de l'intensité de l'émission laser ont été faits dans un modèle de cavité linéaire avec une impulsion de pompe en forme de marche et durant indéfiniment [39].

B) Etude quantitative

Il est possible de caractériser quantitativement les différents paramètres intervenant dans une cavité injectée en utilisant un modèle simple.

On peut considérer la cavité en anneau comme un amplificateur à multiples passages.



Le milieu amplificateur est soumis en permanence au rayonnement de pompe, et l'intensité lumineuse entrant dans l'amplificateur est, à un instant donné t une fraction F de l'intensité qui en est sortie à l'instant $(t-\Delta t)$ auparavant ; $\Delta t = \frac{L}{c}$ est le temps de transit de l'onde dans la cavité. F tient compte de toutes les pertes ayant lieu dans la cavité à cause des éléments sélecteurs, du couplage de sortie, des diffusions, des absorptions et de la diffraction sur les optiques.

Si le rayonnement injecté est monomode, on suppose alors que la cavité est accordée en permanence pour la longueur d'onde de ce rayonnement et on peut donc ignorer le terme de phase. L'évolution du comportement de la cavité peut être analysée en termes d'intensité. On suppose par

ailleurs, que le rayonnement injecté est créé dans la cavité, ce qui correspond à notre montage expérimental.

1) Evaluation de l'intensité nécessaire pour qu'il y ait blocage de l'émission sur le mode injecté

Dans le système que nous avons décrit, l'oscillation libre à la longueur d'onde λ_ℓ démarre sur le bruit d'émission spontanée présent dans la cavité. On peut considérer que l'intensité $I_{o\ell}$ qui provoque, dans le milieu amplificateur, un taux d'émission stimulée égal au taux d'émission spontanée dans le même mode est l'intensité caractérisant l'évolution du fond de fluorescence dans le milieu amplificateur (relation II.13).

On peut adopter le critère suivant pour définir le seuil d'intensité injectée I_{oi} de telle sorte que l'oscillation à λ_i soit prépondérante sur l'oscillation à λ_ℓ :

. à x et t donnés on doit avoir :

$$\frac{dI_i}{dx} \geq \frac{dI_\ell}{dx} \quad (\text{II.20})$$

Ecrivons dans ces conditions la relation (II.3) en employant des notations contractées :

$$\left. \begin{aligned} \frac{dI_i}{dx} &= N_1 \sigma_{ei} I_i + \frac{N_1}{\tau} E_i [\delta\lambda]_i g(x) - N_0 \sigma_{ai} I_i \\ \text{et } \frac{dI_\ell}{dx} &= N_1 \sigma_{e\ell} I_\ell + \frac{N_1}{\tau} E_\ell [\delta\lambda]_\ell g(x) - N_0 \sigma_{a\ell} I_\ell \end{aligned} \right\} \quad (\text{II.21})$$

Au seuil d'oscillation à la longueur d'onde λ_i , la condition (II.20) s'écrit :

$$\frac{dI_{oi}}{dx} = \frac{dI_{o\ell}}{dx}$$

On peut toujours relier I_{oi} et $I_{o\ell}$ par l'égalité :

$$I_{oi} = p I_{o\ell}$$

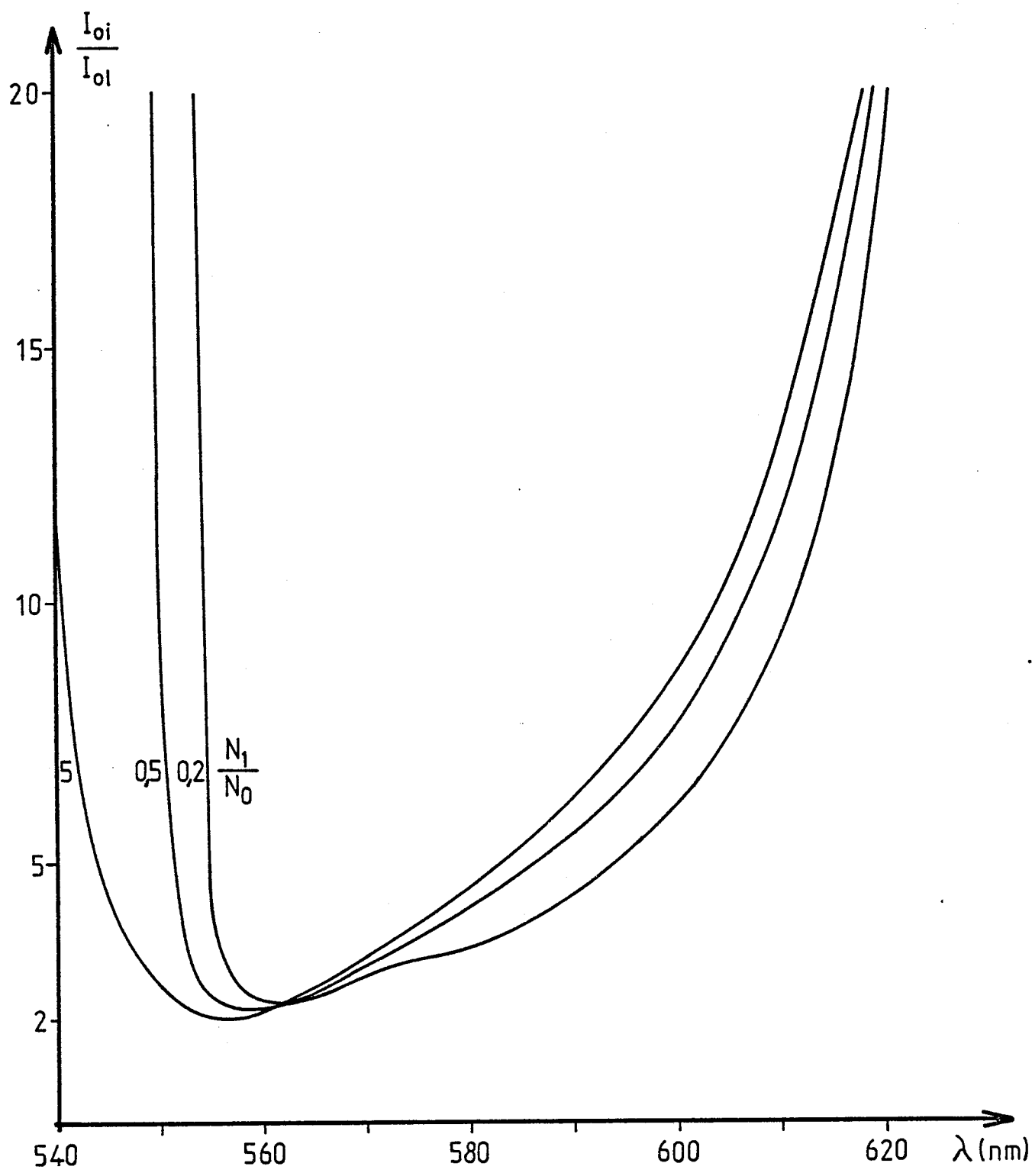
Il suffit donc de déterminer p . On a :

$$(N_1 \sigma_{ei} - N_0 \sigma_{ai}) p I_{o\ell} + \frac{N_1}{\tau} E_i [\delta\lambda]_i g(x) = (N_1 \sigma_{e\ell} - N_0 \sigma_{a\ell}) I_{o\ell} + \frac{N_1}{\tau} E_\ell [\delta\lambda]_\ell g(x)$$

soit finalement [en se servant de (II.13)] :

$$p = \frac{\left(\sigma_{e\ell} - \frac{N_0}{N_1} \sigma_{a\ell} \right) - \left(\sigma_{e\ell} - \sigma_{ei} \frac{[\delta\lambda]_i}{[\delta\lambda]_\ell} \right)}{\sigma_{ei} - \frac{N_0}{N_1} \sigma_{ai}} \quad (\text{II.22})$$

Dans le cas général $[\delta\lambda]_i \ll [\delta\lambda]_\ell$, et comme σ_{ei} et $\sigma_{e\ell}$ sont du même ordre de grandeur, le terme $\sigma_{ei} \frac{[\delta\lambda]_i}{[\delta\lambda]_\ell}$ est négligeable. En outre, les sections efficaces d'absorption sont généralement beaucoup plus faibles que σ_{ei} et $\sigma_{e\ell}$ donc lorsque l'inversion de population $\frac{N_1}{N_0}$ est notable, p tend vers 2, et non 1 comme on pourrait le penser. Ceci n'est pas étonnant, car la définition de $I_{o\ell}$ impose que la contribution à $\frac{dI}{dx}$ soit due pour moitié au terme d'émission stimulée et pour moitié au terme d'émission spontanée. A la longueur d'onde λ_i , si $[\delta\lambda]_i$ est très faible devant $[\delta\lambda]_\ell$, le terme dû à l'émission spontanée s'élimine et il faut injecter une intensité $I_{oi} = 2I_{o\ell}$ pour obtenir un même taux d'accroissement $\frac{dI}{dx}$.



seuil d'intensité injectée en fonction de la longueur d'onde nécessaire pour bloquer l'émission laser

FIGURE 11

Les termes de la forme $(\sigma_{en} - \frac{N_0}{N_1} \sigma_{an})$ représentent l'amplification propre de la solution de colorant. (La condition d'amplification s'écrit $\sigma_{en} - \frac{N_0}{N_1} \sigma_{an} \geq 0$). Pour que l'expression (II.9) ait un sens, il faut que la condition d'amplification soit réalisée à la longueur d'onde λ_i , donc :

$$\frac{N_1}{N_0} > \frac{\sigma_{ai}}{\sigma_{ei}}$$

Sur la figure (11) sont représentées des courbes p en fonction de la longueur d'onde pour diverses valeurs de l'inversion de population. On remarque que p augmente fortement dans les parties extrêmes de la courbe de fluorescence.

Ce qu'il faut retenir avant tout, c'est que si on reste à une longueur d'onde λ_i pas trop éloignée de la longueur d'onde d'oscillation libre, la puissance qu'il faut injecter pour obtenir le blocage de l'émission est très faible ($I_{0\lambda} \approx 2 \cdot 10^{14}$ photons/cm².s soit environ 70 μ W/cm² pour la rhodamine 6G). L'ordre de grandeur des puissances réalisées couramment dans les oscillateurs laser continus dépasse largement ces valeurs, et dans le cas réel, l'intensité dans le laser est de l'ordre de 10^4 W/cm² dans une cavité en anneau. Par conséquent on pourra obtenir le blocage de l'émission sur toute bande d'émission du laser continu.

2) Evaluation de la puissance de l'impulsion émise par l'oscillateur

Reprenons le modèle décrit au début de ce paragraphe B, c'est-à-dire que la cavité injectée se comporte comme un amplificateur à multiples passages.

Dans une cavité en anneau, le faisceau continu injecté est amplifié de multiples fois dans le milieu amplificateur à partir de l'instant du début de l'impulsion de pompe. A chaque passage, l'intensité subit une amplification donnée par :

$$I_{it}^+ = G_{it} I_{it}^- \quad (\text{II.23})$$

où l'indice t réfère à l'instant t , et I^+ et I^- respectivement aux intensités après et avant le milieu amplificateur.

Par ailleurs, à chaque passage à l'extérieur du milieu, l'intensité subit une diminution due aux pertes donnée par :

$$I_{it}^- = F_i I_i^+(t-\Delta t) \quad (\text{II.24})$$

où $F_i (< 1)$ est essentiellement dû aux pertes par couplage avec l'extérieur de la cavité.

Donc, par récurrence à partir des relations (II.23) et (II.24)

$$I_{it}^+ = F_i^n \prod_{k=0}^n G_i(t-k\Delta t) I_{oi} \quad (\text{II.25})$$

où I_{oi} est l'intensité injectée à l'intérieur de la cavité à la longueur d'onde λ_i , et n le nombre de passages.

Il est clair, d'après la figure (5) que l'intensité augmente rapidement aux premiers passages (où le gain est élevé), puis se stabilise à une valeur maximum quand le gain se rapproche de 1.

Le gain est alors décrit par la relation (II.16). Un état stationnaire est atteint lorsque le gain compense exactement les pertes. On a :

$$G_{it} = \frac{A}{I_{it}^-} + 1$$

et $I_{it}^+ = G_{it} I_{it}^- = A + I_{it}^-$ avec $I_{it}^- = F_i I_{it}^+(t-\Delta t)$

Soit, à l'équilibre :

$$I_{it}^+ = A + F_i I_{it}^+(t-\Delta t) = I_{it}^+(t-\Delta t) = I_{\max}$$

d'où $I_{\max} = \frac{A}{1 - F_i}$ avec $A = N\ell \left[\frac{\sigma_{ei} \sigma_p I_p - \frac{\sigma_{ai}}{\tau}}{\sigma_{ei} + \sigma_{ai}} \right]$

Si les pertes sont uniquement dues au miroir de couplage, alors l'intensité à l'extérieur de la cavité s'écrit :

$$I_s = (1 - F_i) I_{\max} = A$$

Dans la plupart des colorants $\sigma_{ai} \ll \sigma_{ei}$ et par ailleurs, $\frac{\sigma_{ai}}{\tau}$ est négligeable devant $\sigma_{ei} \sigma_p I_p$ si le pompage est suffisamment intense, alors :

$$I_s \approx \sigma_p I_p N\ell \quad (\text{II.26})$$

On retrouve là aussi un résultat connu [39] ; cependant il est intéressant de regarder de plus près le cas des impulsions de pompage courtes et des taux de pompage moyennement intenses. En effet, dans la pratique, on dispose souvent d'impulsions laser d'une durée de 10 à 20 ns seulement et on est limité en énergie par la dégradation des fenêtres de cellule ou par la forte perturbation infligée au milieu amplificateur.

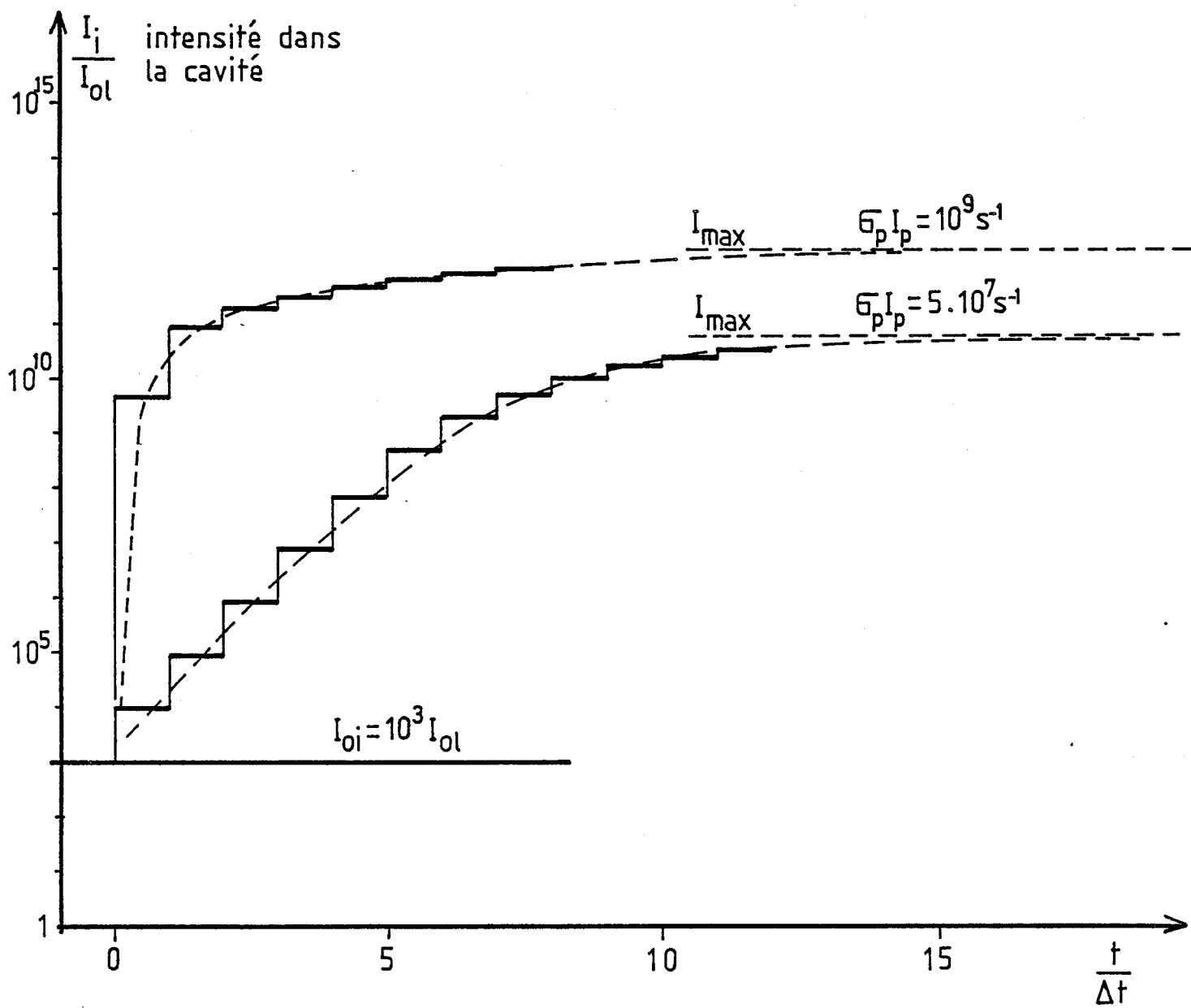


FIGURE 12

3) Influence de la durée de l'impulsion, de l'intensité de pompage et de l'intensité injectée sur l'intensité émise

L'étude précédente supposait une impulsion de durée illimitée (dans la limite cependant où les états triplets ont une influence négligeable). Dans la réalité, les impulsions étant brèves, le rayonnement dans le mode injecté n'est pas amplifié, dans la plupart des cas, jusqu'à l'état stationnaire décrit plus haut ; l'impulsion se construit avec un nombre de passages limités à travers le milieu amplificateur.

Prenons pour exemple deux cas extrêmes, illustrés par la figure (12).

i) Cas où le taux de pompage est élevé (c'est par exemple le cas de la courbe (I) sur la figure 5). L'intensité augmente très vite puisque le gain au premier passage est fort, mais de ce fait même, la saturation est obtenue au bout de quelques passages. L'intensité est alors essentiellement décrite par un gain de la forme (II.16) après le premier passage.

ii) Cas où le taux de pompage est faible (courbe (IV) sur la figure 5). Le gain est constant pendant de nombreux passages puis se sature lentement.

Si la durée de l'impulsion de pompe est telle que seuls quelques tours sont possibles dans la cavité, l'inten-

sité maximum de l'impulsion créée dans le mode injecté peut avoir une valeur beaucoup plus faible que la valeur maximum possible.

En se reportant à la figure (12), on remarque qu'en passant de 2 tours de cavité à 4 tours de cavité, on multiplie l'intensité par 4 dans la situation i) et par cent dans la situation ii). L'effet est bien entendu beaucoup plus sensible lorsque le taux de pompage est faible. L'influence de l'intensité injectée est plus difficilement chiffrable. Cependant, puisque l'intensité maximum à l'état stationnaire est indépendante de l'intensité injectée I_{oi} (II.26), le fait d'augmenter I_{oi} n'est sensible que si l'impulsion d'excitation est brève. Dans le cas i) une variation de I_{oi} se répercute peu sur l'intensité émise qui est déjà proche de la saturation. En outre, dans le cas ii), l'intensité émise varie quasi proportionnellement à l'intensité injectée, ce qui est un inconvénient, on préfère en général avoir une intensité de sortie stable.

4) Considérations de rapport signal sur bruit

Comme pour l'amplificateur que nous avons considéré au paragraphe II.2.1, le rapport signal sur bruit est égal au rapport des intensités émises à la longueur d'onde injectée λ_i et à la longueur d'onde d'oscillation libre λ_o .

Dans une cavité contenant un certain nombre d'éléments sélecteurs, l'intensité sur un spectre large est filtrée par les bandes passantes de ces éléments. En conséquen-

ce, l'intensité de fluorescence émise au début de l'impulsion d'excitation est filtrée très sévèrement par les éléments sélecteurs lors des passages multiples dans la cavité. On peut définir le facteur de filtrage en remarquant que l'intensité moyenne transmise par un système analogue à un Fabry-Perot est proportionnelle à $\frac{\delta\nu}{\Delta\nu}$ où $\delta\nu$ est la largeur en fréquence des pics de transmission et $\Delta\nu$ l'intervalle entre ordres. Le facteur de filtrage global F_ℓ est donc le produit des facteurs relatifs à chaque élément sélecteur, soit pour une cavité en anneau classique : un filtre de Lyot, un étalon mince et un étalon épais (la cavité elle-même étant très longue, elle n'a aucun effet spectral compte tenu de l'ordre de grandeur des temps mis en jeu ici).

$$F_\ell = \left(\frac{\delta\nu}{\Delta\nu}\right)_L \times \left(\frac{\delta\nu}{\Delta\nu}\right)_{EM} \times \left(\frac{\delta\nu}{\Delta\nu}\right)_{EE}$$

L'ordre de grandeur F_ℓ est environ 10^{-2} à 10^{-3} . Le rapport signal sur bruit, tel qu'il a été défini plus haut, est alors donné à partir de (II.25) par :

$$S/B = \frac{I_i}{I_\ell} = \frac{F_i^n I_{oi}}{F_\ell^n F_\ell^n I_{o\ell}} \prod_{k=0}^n \frac{G_i(t-k\Delta t)}{G_\ell(t-k\Delta t)}$$

En plus du facteur de filtrage, vient s'ajouter le fait que, à l'intérieur d'une cavité, la saturation du gain est obtenue très rapidement au bout de quelques passages et nous avons vu (voir paragraphe II.2.1) qu'alors le rapport S/B est excellent.

Tous ces éléments font que le rapport signal sur fond de fluorescence qu'on réalise effectivement à l'aide d'une telle cavité en mode injecté est très bon et même difficile-

ment chiffrable (vraisemblablement supérieur à 10^9).

Il est impossible d'effectuer la même opération avec une suite d'amplificateurs dont le gain total serait très élevé et avec lesquels on n'atteindrait jamais la saturation du gain.

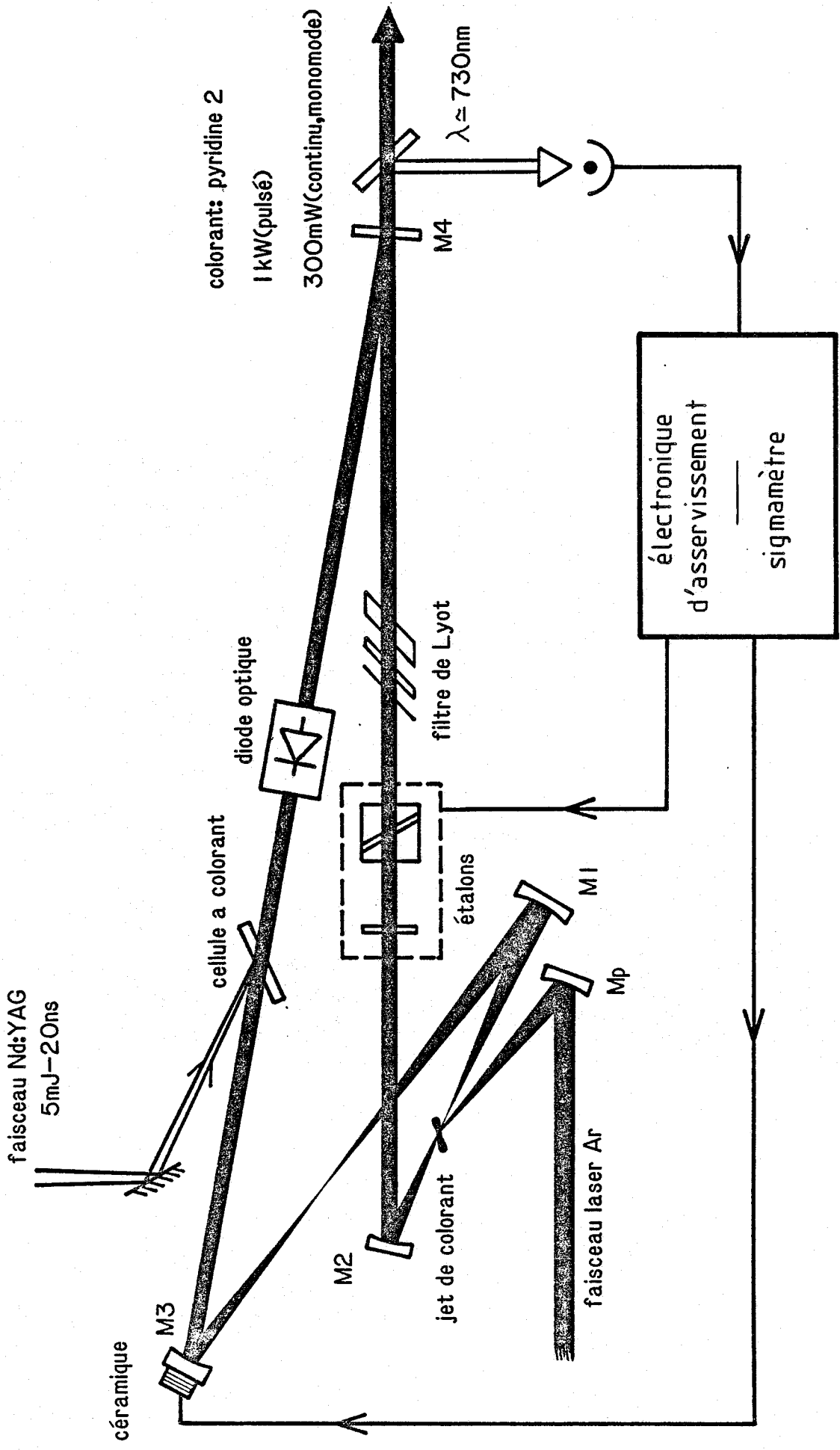


FIGURE 13

cavité en anneau a double excitation

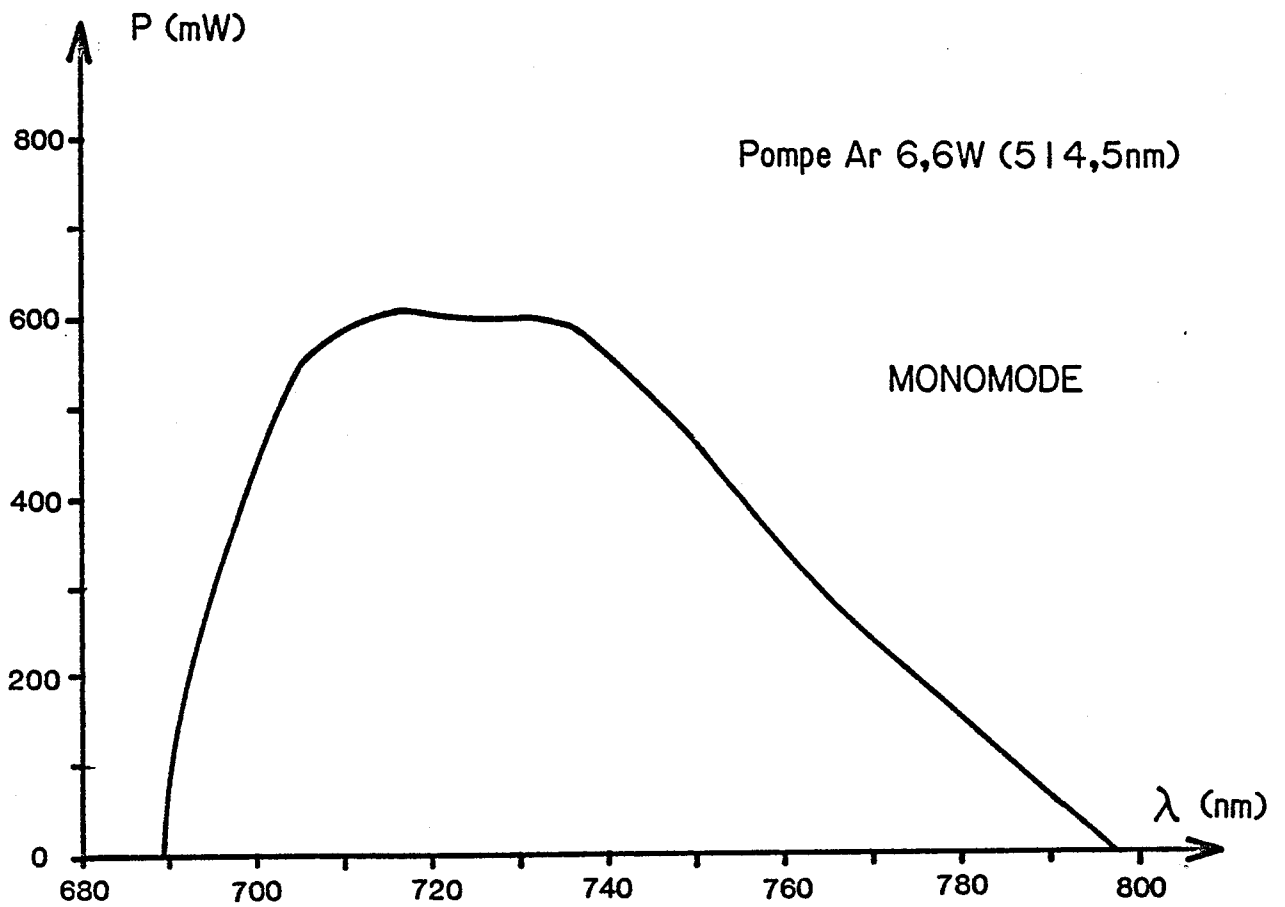
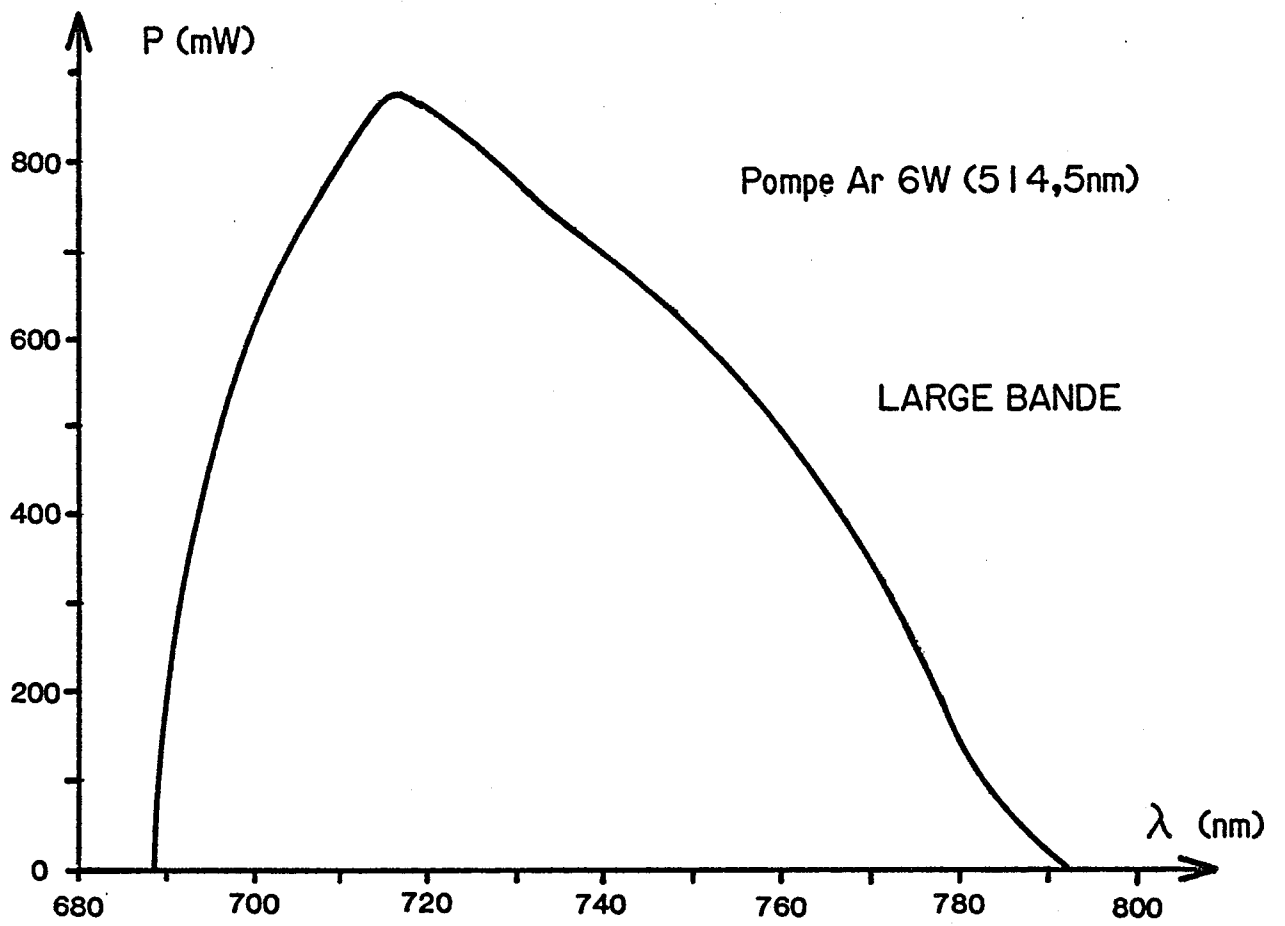


FIGURE 14

courbes d'émission du laser en anneau (colorant:pyridine 2)

II.3. LA CAVITE A DOUBLE EXCITATION EN ANNEAU : DESCRIPTION OPTIQUE ET MECANIQUE

Nous ne décrivons que brièvement la cavité puisqu'il s'agit d'une cavité en anneau commerciale CR699 COHERENT légèrement modifiée pour l'adapter à notre système.

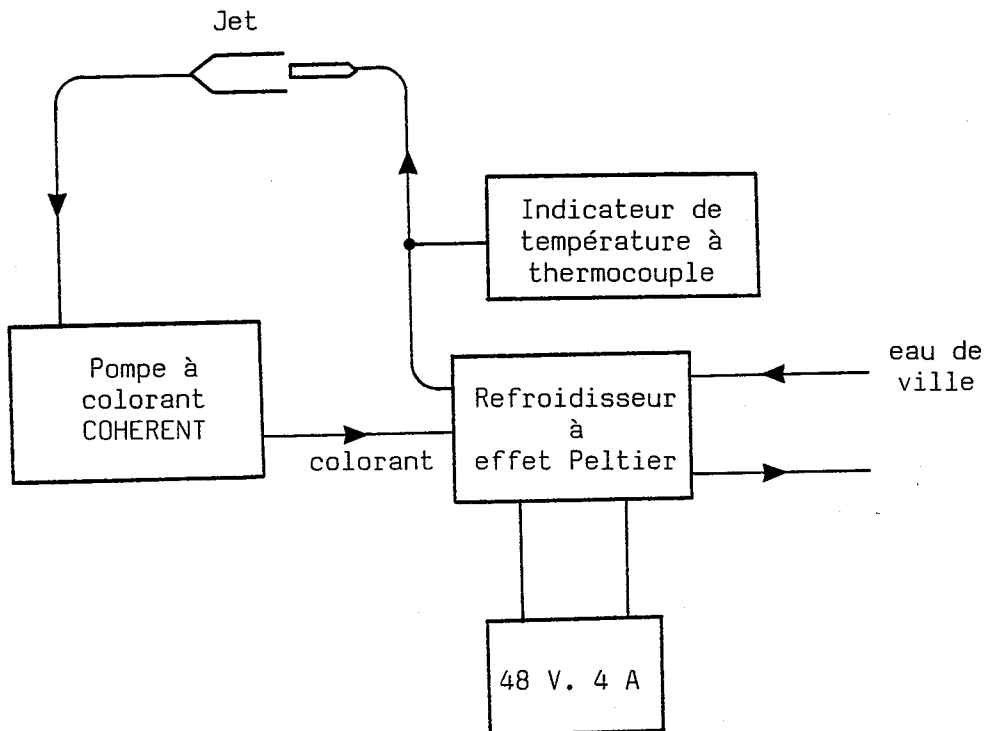
Un schéma de principe est donné figure (13). Sur ce schéma ne figurent pas deux prismes rhomboédriques : l'un sert à compenser l'astigmatisme introduit par l'inclinaison par rapport au faisceau des miroirs sphériques M_1 , M_2 et M_3 , il est placé entre M_1 et M_3 ; l'autre opère simplement une translation du faisceau entre les miroirs M_3 et M_4 pour des raisons d'encombrement des éléments optiques.

La longueur d'onde à laquelle le laser doit émettre est $\lambda_0 \approx 730$ nm. On pourrait utiliser un colorant du type LD700 dont le pompage se fait avec un laser émettant dans le rouge (par exemple un laser à Kr^+), cependant, comme nous disposons d'un laser à Ar^+ nous avons choisi la pyridine 2 dont la bande d'absorption se situe dans le vert (donc bien adaptée aux raies d'émission à 514,5 nm et 488 nm de Ar^+) et qui a un rendement comparable au LD700.

Les courbes expérimentales d'émission (continue) de la pyridine 2 sont données figure (14) en émission large bande et en émission monomode. La longueur d'onde de 730 nm est bien centrée par rapport à cette courbe, le fonctionnement du laser à colorant s'annonce donc sans problème même en ajoutant une cellule à colorant supplémentaire dans la cavité, ce que nous avons vérifié par la suite.

II.3.1. Le jet et la circulation du colorant

Cette partie, essentiellement composée du système commercial, a été modifiée pour augmenter les performances du colorant utilisé. Ce type de colorant (comme en fait la plupart des colorants) est particulièrement sensible aux échauffements et aussi bien le rendement que la durée de vie sont augmentés si on refroidit la solution. Nous avons donc disposé dans le circuit de colorant un système de refroidissement efficace qui permet, dans des conditions normales de température extérieure d'abaisser la température du colorant à environ 5°C.



Ce système est un refroidisseur à effet Peltier capable de dissiper 200 W (modèle SL16WW Nippon Blower). Les calories sont évacuées dans un circuit d'eau de ville et les tuyauteries sont calorifugées avec de la mousse polyuréthane. La pression de colorant, qui à température ordinaire est de 41PSI ($2,8 \cdot 10^5$ Pa), augmente jusqu'à environ 56 PSI à 5°C du fait de l'accroissement de la viscosité du solvant (Ethylène-Glycol).

Nous avons constaté que l'intensité du laser subit un accroissement de près de 50 % du fait de ce refroidissement par rapport à une situation où on utilise seulement l'eau de ville. Les fabricants de laser indiquent également une augmentation de la durée de vie du colorant ; nous avons travaillé avec la même solution plus de deux mois à temps presque complet en n'ayant noté qu'une faible diminution de l'intensité du laser.

II.3.2. La diode optique

Cet élément assure un fonctionnement unidirectionnel de la cavité en anneau. Sans cet élément, l'onde lumineuse peut se propager aussi bien dans un sens que dans l'autre, il y a compétition entre les deux sens de propagation et le laser oscille de façon aléatoire entre ces deux modes au gré des fluctuations mécaniques du jet ou de la cavité.

Si on veut qu'une onde progressive s'établisse dans un seul sens, il faut provoquer des pertes optiques plus importantes dans l'autre sens ; ceci est réalisé par la diode

optique. Elle est composée

1) d'une lame à faces parallèles taillée à l'angle de Brewster dans un verre (SF2) ayant une grande constante de Verdet, laquelle est soumise à un champ magnétique permanent dans la direction de l'onde lumineuse.

2) d'une mince lame de quartz disposée également à l'angle de Brewster et taillée de telle sorte que son axe optique soit parallèle à la direction de propagation de l'onde lumineuse.

Par rapport à un observateur fixe, un verre soumis à un champ magnétique dans la direction de l'onde lumineuse qui le traverse, a la propriété de faire tourner la polarisation de l'onde dans le même sens quel que soit son sens de propagation (effet Faraday). Par contre, si on utilise la propriété de polarisation rotatoire du quartz, toujours pour un observateur fixe, le sens de rotation de la polarisation lumineuse dépend du sens de propagation de l'onde. Par conséquent, l'association de ces deux éléments permet :

- dans un sens de propagation, de renforcer la rotation introduite par le verre de Faraday, par celle de la lame de quartz.

- dans l'autre sens, de compenser la rotation introduite par la lame de quartz, par celle du verre de Faraday.

De nombreux éléments optiques de la cavité ont leurs faces orientées à l'angle de Brewster (fibre de Lyot, rhomboèdres, jet, lame de quartz), donc toute onde lumineuse qui n'a pas une polarisation parfaitement dans le plan d'inci-

dence de ces faces subit des pertes. Il suffit dans la pratique que la polarisation dans un des deux modes, ait tourné de quelques degrés par rapport à ce plan pour que seul l'autre mode subsiste dans la cavité.

II.3.3. Les éléments sélecteurs

Les éléments sélecteurs jouant un rôle passif dans la cavité sont les miroirs dont les traitements réfléchissants multicouches ont un coefficient de réflexion à peu près constant sur tout le spectre de fluorescence du colorant. Hormis le miroir de couplage M_4 (plan), tous les autres miroirs ont un coefficient de réflexion maximum ($> 99\%$). Dans notre cas le miroir de couplage a un coefficient de transmission de 3 à 5 % suivant la longueur d'onde.

Les éléments sélecteurs jouant un rôle actif sont : le jet qui impose en premier la zone spectrale pouvant être explorée, le filtre de Lyot, les étalons mince et épais et enfin la cavité elle-même dont on peut faire varier la fréquence du mode par l'intermédiaire du miroir mobile M_3 .

. Le filtre de Lyot, élément sélecteur le plus grossier, donne néanmoins la possibilité d'affiner la raie d'émission du laser jusqu'à une largeur d'environ 0,05 nm avec un filtre à trois éléments.

Un filtre de Lyot classique est composé d'une succession de lames biréfringentes, d'épaisseur décroissante, et

dont les axes neutres sont dans un plan parallèle aux faces. Les axes respectifs de ces lames sont placés rigoureusement parallèles les uns par rapport aux autres. La courbe de transmission d'une seule lame placée entre polariseurs parallèles prend la forme d'un spectre cannelé :

$$I = I_{\lambda} \cos^2 \frac{\Phi}{2}$$

où I_{λ} est l'intensité incidente à la longueur d'onde λ , et $\Phi = \frac{2\pi}{\lambda}[n_e(\theta) - n_o]e$ est la différence de phase introduite par la traversée de la lame d'épaisseur e . L'indice extraordinaire $n_e(\theta)$ est fonction de l'angle θ entre l'axe optique du cristal et la direction de polarisation ; n_o est l'indice ordinaire. L'angle θ est pris ici égal à 45° , condition pour qu'il y ait maximum de contraste du spectre cannelé. Les maxima de transmission sont tels que :

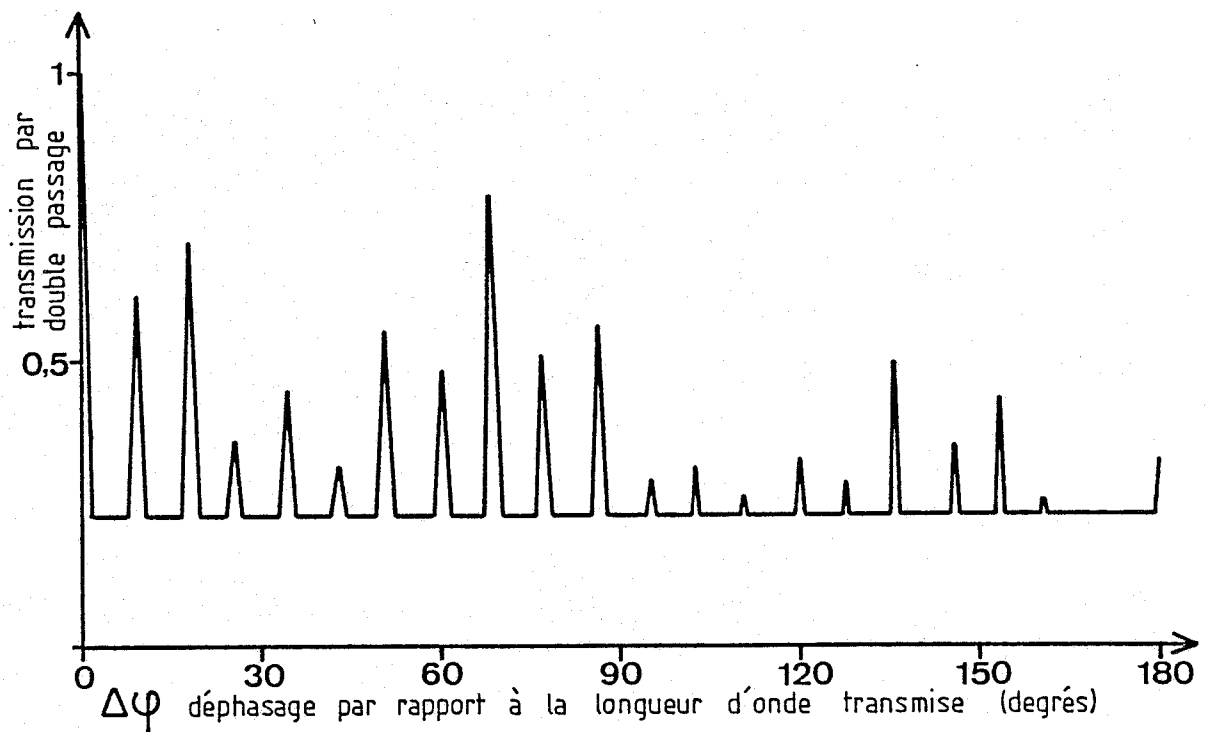
$$\frac{\Phi}{2} = k\pi \quad \text{soit} \quad \lambda = \left(\frac{n_e(\theta) - n_o}{k} \right) e$$

où k est un entier qui représente l'ordre d'interférence. Le calcul montre que si on dispose d'un assemblage de polariseurs parallèles et de lames dont l'épaisseur e augmente en progression géométrique, la bande passante du système est constituée de pics espacés de l'intervalle entre ordres de la lame la moins épaisse et de largeur spectrale, celle de la lame la plus épaisse.

De plus, si on fait tourner en bloc les lames par rapport aux polariseurs autour d'un axe parallèle au faisceau incident (angle θ), on fait varier la quantité $(n_e(\theta) - n_o)$

et par conséquent, dans un même ordre k , la longueur d'onde transmise λ .

Ces deux propriétés de sélection et d'accordabilité de la longueur d'onde sont utilisées pour confectionner un filtre de Lyot constitué de trois lames en quartz, inclinées à l'angle de Brewster par rapport au faisceau laser circulant dans la cavité. La courbe de transmission d'un tel filtre a été calculée en tenant compte du fait que le taux de polarisation introduit par les lames n'est que partiel : [40a]



transmission, à $\theta=45^\circ$, d'un filtre de Lyot dans une cavité contenant les éléments suivants inclinés à l'angle de Brewster: une cellule à colorant et trois lames biréfringentes dont les épaisseurs sont dans le rapport 1:4:16. En abscisse on rapporte le retard de phase à la lame mince

Nous pouvons remarquer que de nombreux pics de transmission existent en dehors du pic principal (pour lequel $\Delta\phi = 0$). En fait, pour les longueurs d'ondes correspondant à ces pics secondaires, la transmission du système n'est pas assez im-

portante pour qu'il y ait oscillation laser et l'on reste en-dessous du seuil. L'épaisseur de la lame la plus fine est telle que les autres pics principaux de transmission soient décalés de 100 nm environ pour que le laser n'oscille que sur un ordre, même avec un colorant permettant une émission laser sur 70 nm ou plus. L'épaisseur de la lame la plus épaisse est telle que la bande passante du filtre est de 380 GHz. Cependant, l'émission laser n'a lieu que sur une largeur de 2 GHz lorsque ce filtre est placé dans la cavité (phénomène lié à l'élargissement homogène de la courbe de gain).

La sélection de la longueur d'onde s'opère donc simplement en tournant ensemble les trois lames autour d'un axe perpendiculaire à leurs faces.

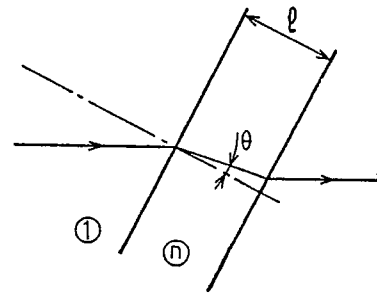
. **Les étalons mince et épais**, la sélection de la fréquence émise peut être encore affinée par l'emploi d'étalons Fabry-Pérot à faces planes. L'épaisseur d'un Fabry-Pérot détermine l'intervalle entre ordres :

$$\Delta\nu = \frac{c}{2n\ell \cos \theta}$$

où c est la vitesse de la lumière, n l'indice du milieu, ℓ l'épaisseur de l'étalon et θ l'angle d'inclinaison du rayon par rapport à la normale dans le milieu.

Par ailleurs, la bande passante $\delta\nu$ de l'étalon peut être définie à l'aide du coefficient de finesse F par :

$$\delta\nu = \frac{\Delta\nu}{F}$$



$$\text{avec } F = \frac{\pi\sqrt{R}}{1-R}$$

où R est le pouvoir réflecteur des lames. On donne au Fabry-Pérot mince l'épaisseur convenable pour qu'un seul ordre soit transmis par l'ensemble filtre de Lyot + étalon mince et d'autre part pour que cet ensemble sélectionne un seul mode de l'étalon épais.

Il faut noter que l'émission laser n'a lieu qu'au maximum de la courbe de transmission des éléments sélecteurs ; une décroissance de quelques pour cent dans les ailes de cette courbe de transmission suffit à éliminer les modes adjacents. L'intervalle entre ordres de la cavité en anneau est $\Delta\nu_c = 200$ MHz.

L'étalon mince utilisé a un intervalle entre ordres $\Delta\nu_M = 225$ GHz et l'étalon épais $\Delta\nu_E = 10$ GHz. La largeur de l'émission laser résultant de la superposition de tous les éléments sélecteurs est d'environ 20 MHz ; elle est limitée essentiellement par les instabilités mécaniques et thermiques du jet et de la cavité. Pour affiner encore cette largeur il est nécessaire d'intervenir sur la longueur de la cavité par un système d'asservissement que nous détaillerons au paragraphe II.4.

Pour réaliser un balayage en longueur d'onde sur un domaine supérieur à l'intervalle entre modes du laser, les lames de l'étalon épais sont montées sur céramique piézo-électrique pour en faire varier l'épaisseur. L'étalon mince est placé sur une monture galvanométrique et peut ainsi

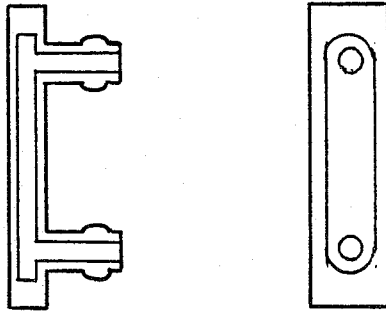
tourner autour d'un axe perpendiculaire au faisceau laser. Ces opérations ont pour rôle de déplacer les pics de transmission de ces éléments sélecteurs de sorte qu'ils restent accordés avec le mode laser au cours d'un balayage en longueur d'onde.

II.3.4. La cellule intracavité excitée en impulsion

L'introduction de cette cellule dans la cavité ne fait pas baisser de façon dramatique l'intensité du laser continu, puisque le fonctionnement monomode est obtenu avec une puissance de sortie de 300 mW environ pour une puissance de pompe de 5,5 W.

Dans un premier temps, nous avons utilisé une cellule avec des fenêtres planes et parallèles interchangeablees montées dans un corps en acier inoxydable ; malheureusement, il arrive parfois que des particules absorbantes subsistent dans la solution de colorant malgré le filtrage associé à la circulation. Ceci a pour résultat que les fenêtres se détériorent sur leur face interne et la puissance du laser continu baisse inexorablement. Pour éviter d'avoir à changer trop souvent les fenêtres, ce qui entraîne de nombreuses et assez longues manipulations et finit par être d'un coût élevé, nous avons utilisé une cellule en verre commercialisée par Hellma sous la référence : 137 OS. Le schéma d'une telle cellule est donné ci-après.

Cette cellule est d'une qualité optique suffisante pour que le laser fonctionne de façon satisfaisante.



L'avantage évident est que la surface utilisable est très importante, et s'il arrive qu'une fenêtre se pique, un montage mécanique approprié permet le déplacement latéral de la cellule sans que le réglage du laser en soit affecté.

Les faces des fenêtres sont inclinées à l'angle de Brewster pour éliminer les pertes par réflexion. Par ailleurs, la circulation du colorant doit être rapide pour diminuer la perturbation introduite par l'excitation pulsée du laser Nd : YAG.

II.4. LE SYSTEME D'ASSERVISSEMENT ET DE BALAYAGE

L'asservissement et le blocage en fréquence du laser nécessite une référence stable dans le temps avec une précision qui soit compatible avec les impératifs de l'expérience. Dans notre cas, la résolution du laser étant limitée par la durée de l'impulsion lumineuse (10 ns) à environ 40 MHz, c'est cette valeur que nous avons retenue pour déterminer les paramètres du système de référence qui impose la stabilité.

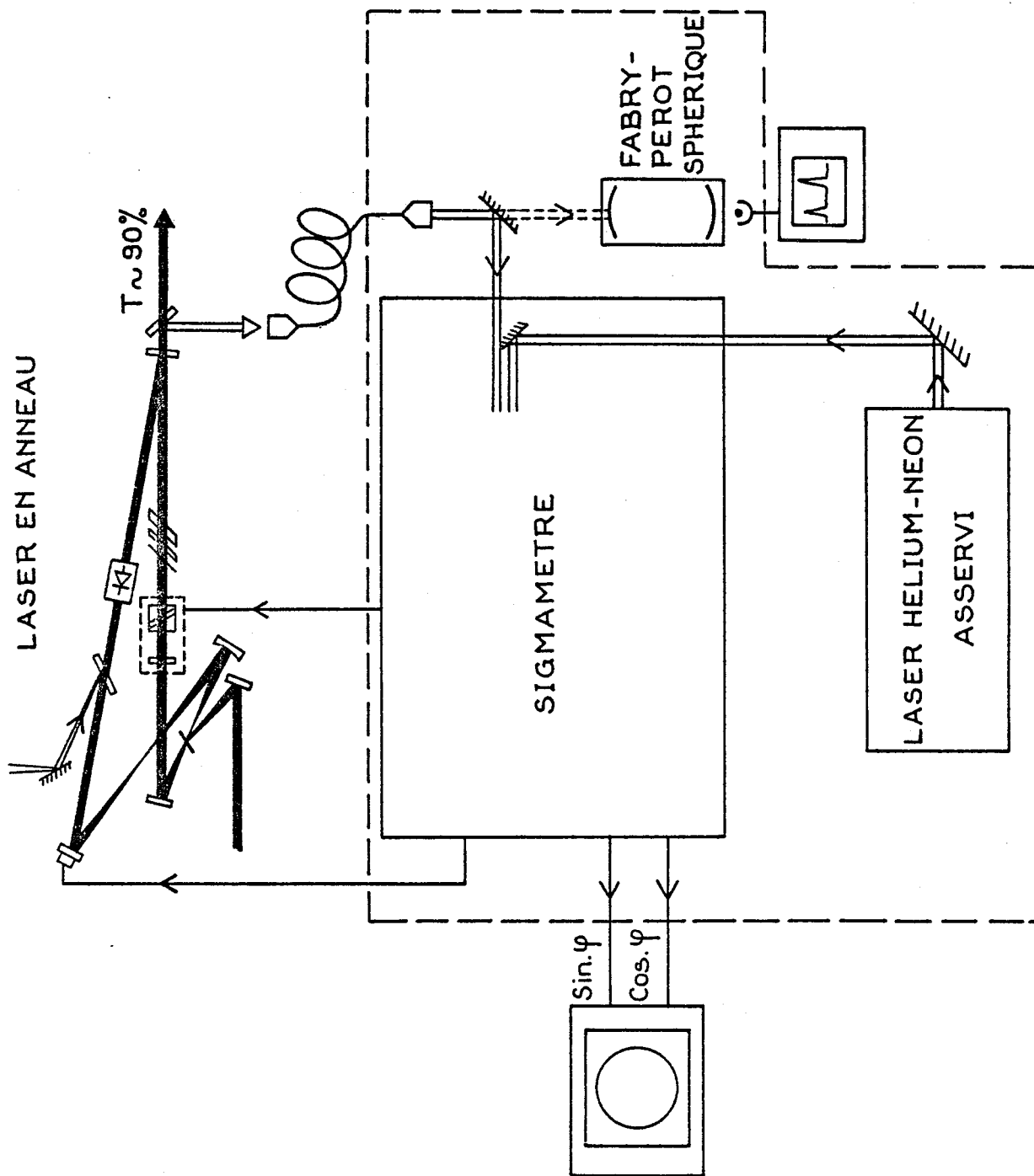


FIGURE 15 schéma du système d'asservissement et de contrôle

La figure 15 représente schématiquement l'ensemble du système d'asservissement et de contrôle. Celui-ci se compose principalement d'un sigmamètre, dont la stabilité est assurée par un laser hélium-néon asservi par température, et dont le signal, traité électroniquement, agit directement sur les éléments sélecteurs de la cavité en anneau. Un interféromètre de Fabry-Pérot sphérique en montage confocal, d'intervalle entre ordres 750 MHz, permet de contrôler visuellement la stabilité du mode laser.

La liaison optique entre le laser en anneau et le sigmamètre est réalisée par une fibre optique monomode à maintien de polarisation. Cette liaison présente l'avantage de diminuer notablement le nombre de réglages à effectuer lorsqu'on doit retoucher à la cavité laser : l'ensemble optique du sigmamètre est un bloc indépendant dont le réglage est effectué une fois pour toutes. Nous allons décrire en détail le sigmamètre et le laser hélium-néon de stabilisation.

II.4.1. Le laser hélium-néon stabilisé en fréquence

La résolution donnée par le laser ne va pas être notablement diminuée si la stabilité à court et à long terme du mode laser continu correspond au plus au quart de la largeur spectrale du mode laser en impulsion. Ce critère, un peu arbitraire, nous permet cependant de fixer une valeur maximale des instabilités en fréquence admissibles, soit dans

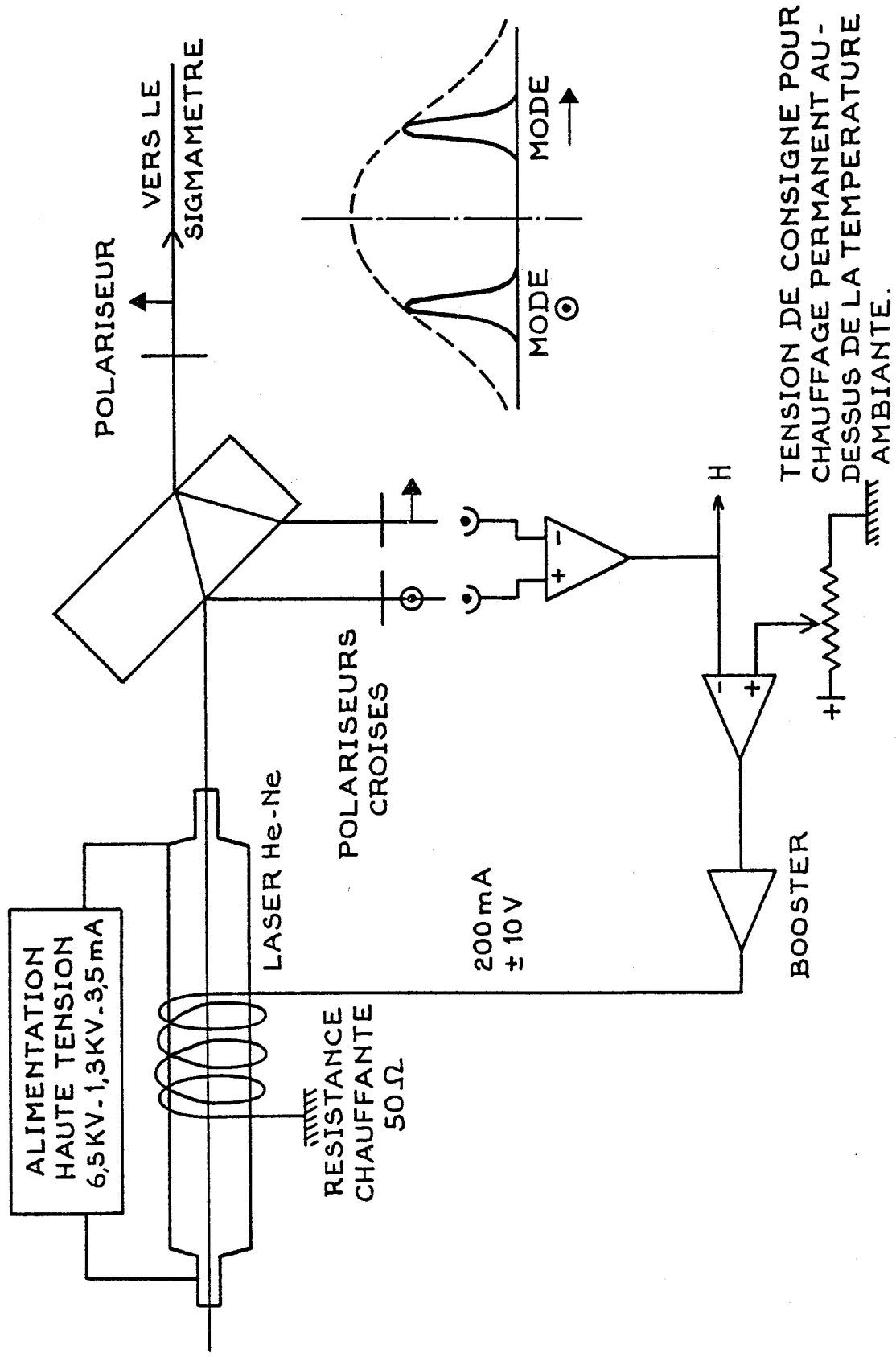


FIGURE 16 asservissement du laser hélium-néon

notre cas environ 10 MHz.

Un laser hélium-néon asservi en fréquence sur une raie d'absorption de l'iode a une stabilité bien meilleure que cette valeur (< 1 MHz) [40b]. On a donc utilisé un montage plus simple à mettre en oeuvre mais qui permet quand même d'atteindre une stabilité meilleure que 10 MHz. Le schéma de ce système est représenté figure (16). La cavité du laser hélium - néon à miroirs internes est suffisamment courte pour que seulement deux modes oscillent à l'intérieur de l'enveloppe Doppler limitant le gain du milieu amplificateur. Dans ces conditions, les deux modes émis ont des polarisations rectilignes perpendiculaires et on a vérifié par ailleurs que les polarisations ont toujours la même orientation par rapport au tube après extinction et remise en route de la décharge (il suffit de peu de chose pour déterminer un axe privilégié et donc initier une onde de polarisation définie : imperfection d'un miroir, ou plus vraisemblablement plans de symétrie de la décharge).

Grâce à ces caractéristiques du laser hélium-néon, il est possible de stabiliser l'émission laser en forçant les deux modes à garder leurs intensités égales. Le faisceau issu de la cavité est divisé en trois parties par une lame de verre. La partie principale est envoyée directement dans le sigmamètre pour l'asservissement de l'interféromètre ; les deux réflexions sur la lame de verre sont analysées séparément par des polariseurs croisés et détectées par des photodiodes à gain réglable. Le tube a été orienté pour que

les polarisations émises soient parallèles aux axes des polariseurs. Chaque photodiode délivre donc un signal proportionnel à l'intensité émise sur le mode transmis par le polariseur placé devant elle. Un système soustracteur donne un signal d'erreur proportionnel à l'écart des intensités des deux modes. La boucle de gain est fermée sur une résistance chauffante enroulée autour du tube. Le chauffage du corps du tube agit sur l'allongement de la cavité avec une constante de temps assez faible (de l'ordre de 10 ms). Le tube est soumis à un chauffage permanent de façon que le point de fonctionnement de l'asservissement soit situé à une température supérieure à la température ambiante.

En pratique, comme la lame de verre est orientée à 45° par rapport au faisceau incident (proche de l'incidence de Brewster pour la polarisation dans le plan d'incidence), les intensités sur les photodiodes ne sont pas égales lorsque les modes sont placés symétriquement dans l'enveloppe Doppler. En jouant sur les gains des amplificateurs, on peut rattraper ce décalage, mais on peut aussi l'accentuer si on veut une polarisation privilégiée sur le faisceau principal; dans ce dernier cas, l'asservissement se fait dans des conditions un peu plus défavorables puisque les variations d'intensité en fonction de la fréquence sont différentes suivant les deux modes. La stabilité du système seul n'a pas été mesurée de façon précise. Cependant, nous avons vérifié l'ordre de grandeur des variations rapides de fréquence en réalisant des battements avec un laser hélium-néon asservi

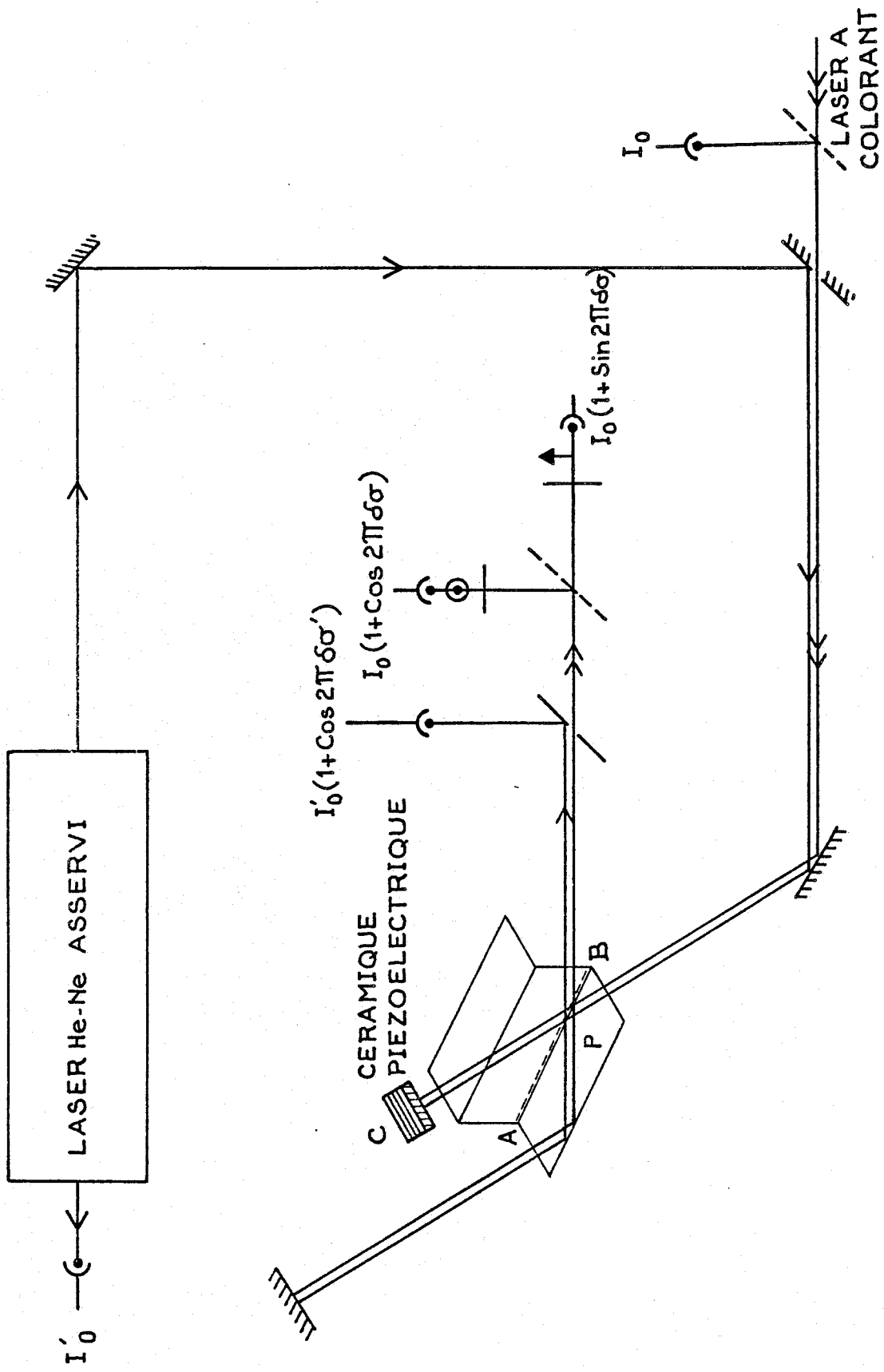


FIGURE 17 sigmètre : partie optique

sur l'iode. Les battements observés à l'aide d'une photodiode rapide à avalanche nous ont permis de vérifier que les instabilités en fréquence ne dépassent pas au total 5 MHz sur quelques secondes.

II.4.2. Le sigmamètre : partie optique [34,35,41]

La partie optique de l'appareil est schématisée figure (17). Le principe de base est celui d'un interféromètre de Michelson de différence de marche 20 cm. Chacune des voies de l'interféromètre est associée à une polarisation bien déterminée du faisceau laser qui s'y propage. Celui-ci pénètre dans l'appareil polarisé à 45° du plan de la figure. En sortie, on analyse chaque fraction du faisceau polarisée parallèlement et perpendiculairement par rapport à ce plan ; compte tenu des déphasages respectifs à la réflexion totale verre-air placée dans l'un des bras de l'interféromètre, on obtient deux signaux :

$$I_0 [1 + \cos(2\pi\delta\sigma + \psi)] \quad \text{et} \quad I_0 [1 + \cos(2\pi\delta\sigma)]$$

où I_0 est proportionnel à l'intensité du faisceau laser, σ son nombre d'ondes et δ la différence de marche de l'interféromètre. L'angle d'incidence à la réflexion totale et l'indice n du verre du prisme P sont choisis de telle sorte que la différence de phase ψ soit égale à $\frac{\pi}{2}$. Après soustraction de la composante continue et division par I_0 (traitement électronique), nous disposons de deux signaux : $\sin 2\pi\delta\sigma$ et $\cos 2\pi\delta\sigma$ donnant la phase $\Phi = 2\pi\delta\sigma$ à $2k\pi$ près (k entier).

Si nous appliquons ces signaux aux entrées X et Y d'un oscilloscope, nous obtenons un point représentatif de la phase sur un cercle qui serait entièrement décrit en faisant varier cette phase de 2π , c'est-à-dire pour une variation du nombre d'onde σ de $\frac{1}{\delta}$. Le bloc de prismes est constitué de trois prismes identiques, ce qui permet le cas échéant d'atteindre la différence de marche nulle ; ce système présente l'avantage d'être entièrement achromatique (condition nécessaire pour être utilisé en mesureur absolu de nombre d'ondes [35]). Les prismes sont obtenus à partir d'un seul rhomboèdre tronçonné en trois parties. Ces trois parties sont ensuite adhésives optiquement suivant le schéma 17 ; la face AB est recouverte d'une aluminure semi-transparente qui est adhésive à l'aide de méthanol sitôt sortie de la cloche de traitement pour éviter les poussières et l'oxydation (l'adhérence à l'eau distillée est à proscrire pour cette face à cause des inclusions de bulles d'air).

Les trajets du faisceau laser hélium-néon d'asservissement et du faisceau laser à colorant sont réglés parallèlement de telle sorte que l'interféromètre soit parfaitement réglé pour les deux faisceaux simultanément.

II.4.3. Le sigmamètre : partie asservissement et balayage

A) Asservissement de la différence de marche de l'interféromètre

La voie "Asservissement de la différence de marche" ne nécessite qu'un signal sinusoïdal transmis par l'interféromètre. Après soustraction de la composante continue et division par un signal I_0 proportionnel à l'intensité du laser He-Ne, le signal d'erreur est donné par les variations de phase autour d'une valeur nulle. La boucle d'asservissement est fermée par une céramique piézo électrique (C) sur laquelle est monté un des miroirs de l'interféromètre. Un système de remise à zéro permet de réinitialiser l'intégrateur lorsque celui-ci a été mis en saturation par une dérive progressive de la différence de marche.

On peut appliquer à la céramique une tension en dent de scie d'amplitude suffisante pour faire varier la phase de 2π ; avec cet artifice, il est possible de régler tous les paramètres de l'interféromètre pour que la figure représentant la variation de la phase sur un oscilloscope soit parfaitement circulaire et centrée autour de zéro.

Lorsque le sigmamètre est asservi, il est possible d'évaluer de façon assez précise la stabilité à court terme de l'ensemble que nous venons de décrire. En effet, on peut détecter en A les variations de la phase du signal délivré

par l'interféromètre. Ces variations de phase $d\Phi'$ résultent des variations simultanées de la fréquence du laser hélium-néon et de la différence de marche δ de l'interféromètre.

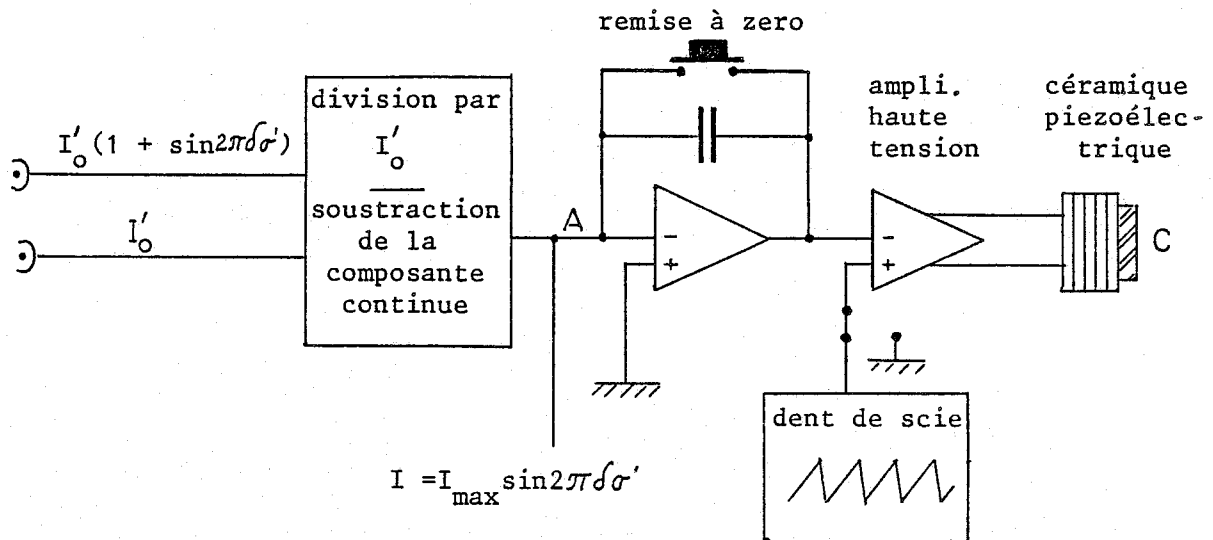


FIGURE 18

Schéma électronique de l'asservissement de la différence de masse du sigmamètre

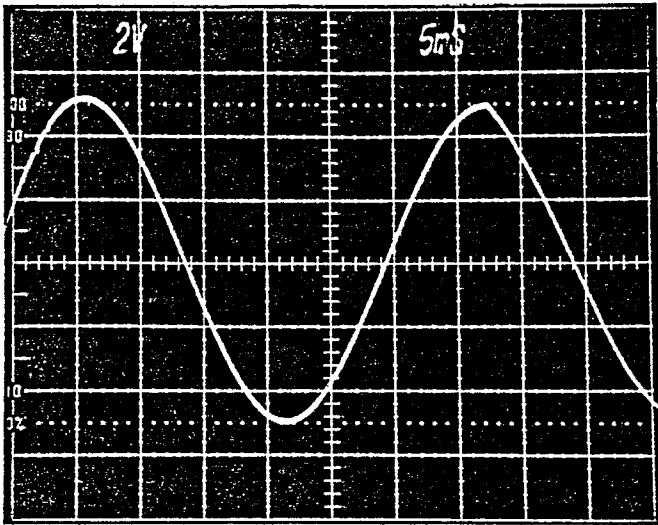
Soit I' l'amplitude du signal détecté en A, si on envoie un signal en dents de scie à la céramique (on fait donc varier δ). $I' = I_{\max} \sin 2\pi\delta\sigma' = I_{\max} \sin \Phi'$.

Soit maintenant dI' le signal détecté en A si le sigmamètre est asservi par le laser He-Ne.

$$\text{On a : } dI' = I_{\max} \cos \Phi' d\Phi'$$

Comme l'asservissement se fait autour d'une valeur nulle de la phase, $\cos \Phi' \approx 1$ et :

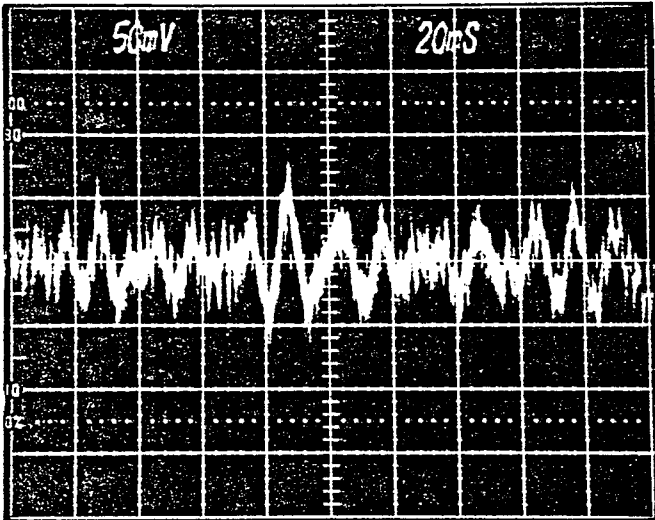
$$d\Phi' = \frac{dI'}{I_{\max}}$$



a)

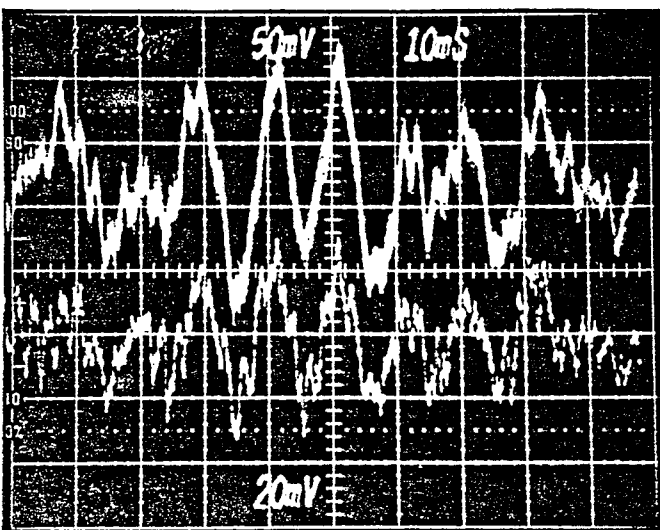
balayage de δ

$$I' = I'_{\max} \sin 2\pi \delta \sigma'$$



b)

interféromètre asservi



c)

signal au point A (figure 18)

signal au point H (figure 16)

FIGURE 19

Il y a une nette corrélation entre le signal issu de l'interféromètre (point A) et le signal d'asservissement du tube hélium-néon (point H sur la figure 16) ; ces deux signaux sont reproduits sur la figure (19c). Ceci veut dire que les variations de phase détectées en sortie de l'interféromètre sont principalement dues aux variations rapides de fréquence du laser hélium-néon (de constante de temps environ 10 ms). La constante de temps de l'asservissement est beaucoup plus grande (environ 1s) si bien que les variations de la différence de marche n'apparaissent pas.

Dans ces conditions, la variation de fréquence rapide dv du laser hélium-néon est donnée par :

$$dv = \frac{c}{2\pi\delta} \frac{dI'}{I_{\max}}$$

La figure 19 montre des oscillogrammes correspondant :

- a - au signal sinusoïdal donnant la valeur de $I_{\max} = 5 \text{ V}$
- b - au signal, système asservi, donnant la valeur de $dI' = \pm 50 \text{ mV}$

Sachant que $\delta = 20 \text{ cm}$, on en déduit $dv \approx \pm 2,5 \text{ MHz}$.

La stabilité en fréquence du laser à colorant devrait donc être au mieux de cet ordre de grandeur. Cette valeur pourrait être réduite encore en isolant l'ensemble des vibrations transmises par le sol et des vibrations acoustiques, cependant, comme dv est bien inférieur à la valeur de 10 MHz que nous nous sommes fixés, nous n'avons pas cherché à améliorer. La stabilité à long terme ne sera testée que sur le système complet au cours de l'expérience sur la transition Lyman α de l'hydrogène.

B) Asservissement du laser à colorant

Deux phénomènes peuvent faire varier la fréquence du laser de façon incontrôlée :

- . Les sauts du mode d'oscillation,
- . les dérives lentes ou rapides (jitter).

Ces deux phénomènes sont liés à des instabilités au niveau du jet, et à des perturbations sur la cavité, d'origine mécanique ou thermique. Pour compenser ces instabilités, on peut jouer sur deux éléments : le Fabry-Perot épais (F.P.E.) et le miroir monté sur céramique piézoélectrique M_3 . L'asservissement du F.P.E. permet de bloquer le mode laser et d'éviter en particulier les sauts de mode. Pour cela, la fréquence ν_T du maximum de transmission du F.P.E. est modulée à 2 kHz par une tension sinusoïdale de faible amplitude appliquée à sa céramique. L'intensité I du laser qui dépend de l'écart de fréquence $\Delta\nu = \nu_C - \nu_T$ entre la fréquence de résonance de la cavité ν_C et celle du pic de transmission ν_T de l'étalon, se trouve ainsi modulée. Cette modulation est détectée à l'aide d'une détection synchrone, ce qui permet d'obtenir en sortie un signal proportionnel à la dérivée de la courbe $I(\Delta\nu)$; ce signal passe par zéro lorsque $\Delta\nu = 0$, il est utilisé comme signal d'erreur dans une boucle d'asservissement. La boucle se referme ensuite sur la céramique du F.P.E. par l'intermédiaire d'un amplificateur haute tension.

Le miroir M_3 monté sur céramique permet de compenser les dérives. Nous disposons d'une référence stable, le sig-

mamètre, dans lequel nous envoyons une fraction de la lumière du laser à colorant. Il fournit, en sortie, des signaux définissant une phase Φ qui dépend essentiellement de la fréquence du laser. Un système électronique fabrique ensuite des signaux $\cos(\omega t + \Phi_0)$ et $\sin(\omega t + \Phi_0)$, qui combinés avec les signaux $\sin \Phi$ et $\cos \Phi$ provenant du sigmamètre donnent un signal de la forme : $\sin(\omega t + \Phi - \Phi_0)$. Sa phase est comparée à celle d'un signal de référence $\cos \omega t$ et l'on obtient en sortie de ce détecteur de phase un signal continu qui est une fonction linéaire de $(\Phi - \Phi_0)$. Ce signal, centré sur la valeur zéro, est directement utilisé comme signal d'erreur dans la boucle d'asservissement du laser. En présence de l'asservissement, la phase Φ se bloque sur la phase électronique Φ_0 ($\Phi - \Phi_0 = 0$). La pulsation ω correspond à une fréquence suffisamment élevée (50 KHz) pour ne pas limiter vers les hautes fréquences la bande passante de la boucle d'asservissement (qui est limitée en fait à environ 1 KHz par la céramique supportant le miroir M_3).

Le signal d'erreur est utilisé dans une première branche pour annuler les dérives lentes ; il est injecté dans un intégrateur passe-bas - qui est destiné par ailleurs au balayage - puis dans la céramique par l'intermédiaire d'un amplificateur haute tension. La deuxième partie du signal, après découplage capacitif, est injectée directement dans l'amplificateur haute tension et compense les dérives rapides.

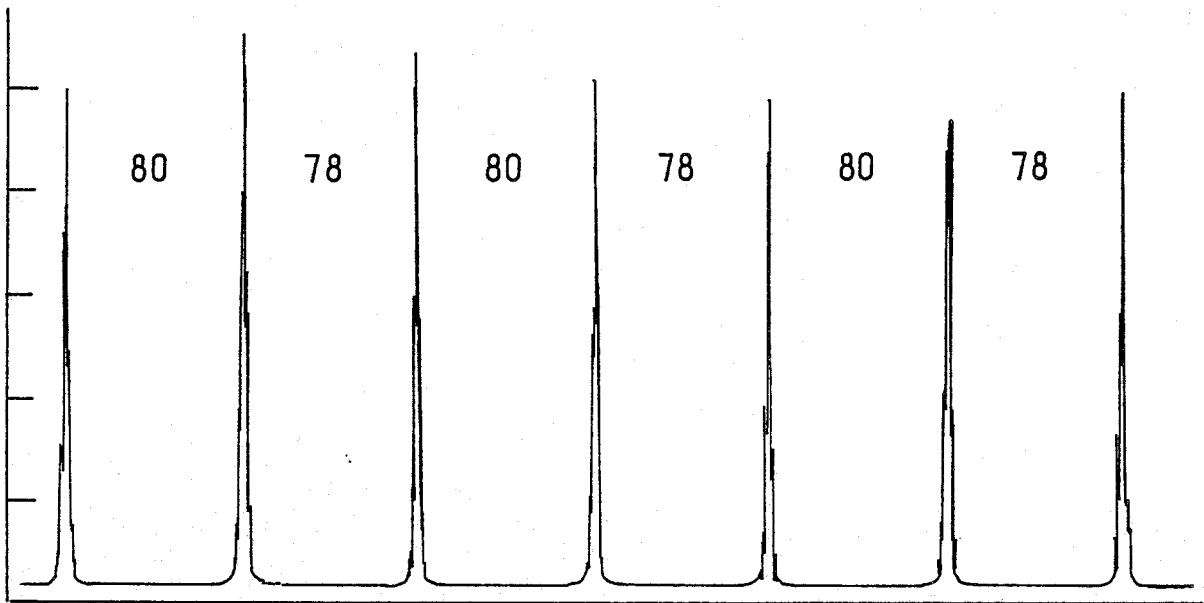
On a vérifié, à l'aide de l'analyseur de modes de contrôle, que le jitter résiduel (instabilités rapides de la fréquence du laser) n'est pas supérieur à ± 3 MHz, ce qui reste dans les limites que nous nous sommes imposées (10 MHz).

c) Le balayage du laser à colorant

Le balayage en fréquence doit se faire de la façon la plus linéaire et la plus uniforme possible sur une grande dynamique.

La linéarité est donnée principalement par le sigma-mètre. Pour réaliser un balayage, on fait varier par pas la phase électronique Φ_0 , et grâce à l'asservissement décrit ci-dessus, la phase optique Φ va reprendre la même valeur que Φ_0 à chaque incrément. Pour que le balayage soit linéaire, il faut que les incréments $\Delta\Phi$ soient tous identiques ; par conséquent, les cercles représentant les phases Φ_0 et Φ doivent être parfaitement ronds et centrés sur zéro (quand on fait un réglage sur oscilloscope). Un exemple d'enregistrement des franges de Fabry-Pérot au cours d'un tel balayage est donné ici ; le nombre d'incrément $\Delta\Phi$ est indiqué pour chaque intervalle entre ordres. Ceci donne une idée de la linéarité du balayage : une légère erreur subsiste ici, sans doute due à un petit décentrage du cercle de phase ; cette erreur est périodique à cause du principe même du balayage.

Au cours du balayage, le maximum de transmission du F.P.E. reste automatiquement centré sur le mode de la cavité grâce à son asservissement.



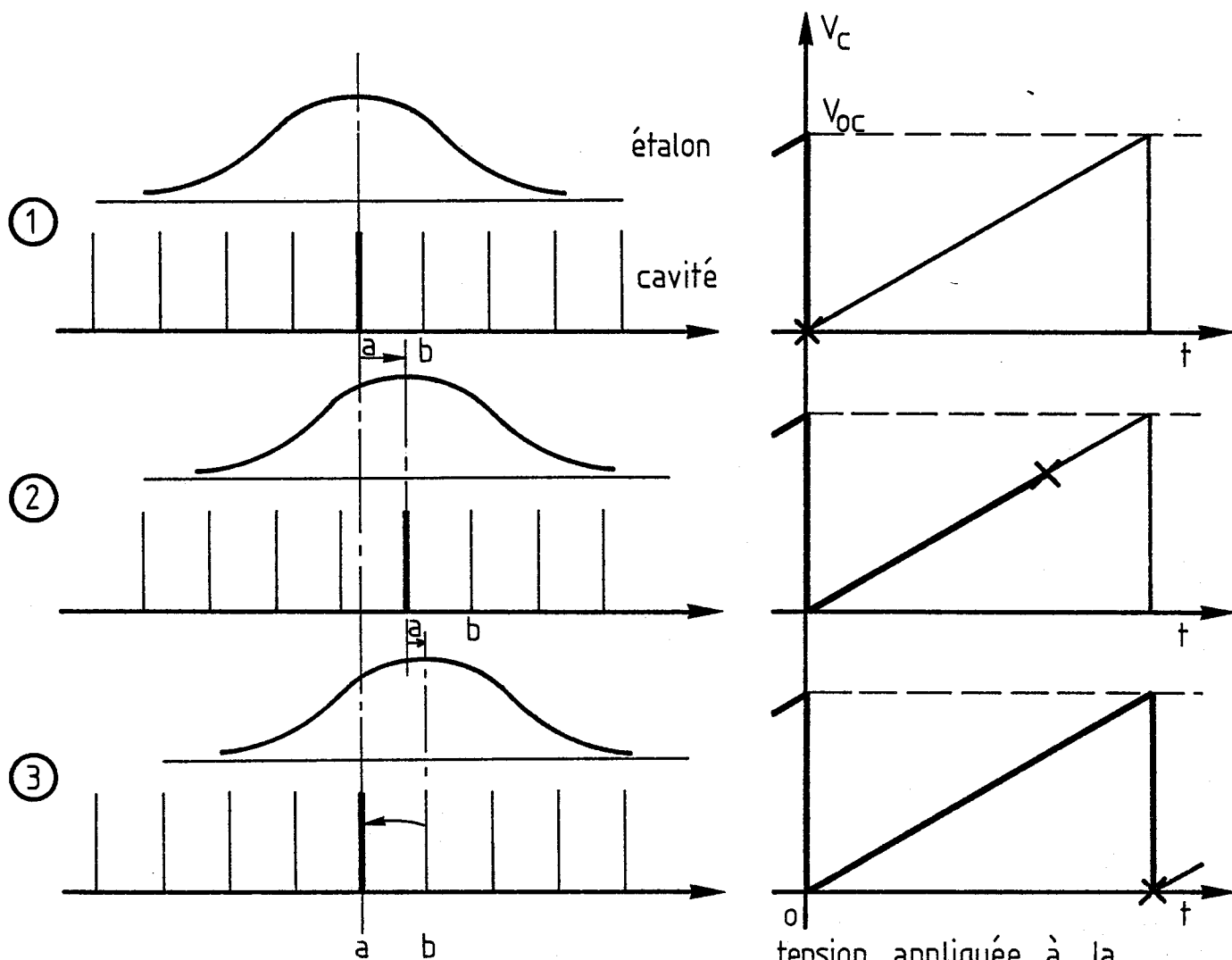
Si on désire faire un balayage de grande amplitude, il n'est pas possible de déplacer continûment le miroir M_3 sans être limité très vite par la dynamique de la céramique. En effet, le maximum de transmission de la cavité est donné par

$$v_c = k \frac{c}{L} \quad \text{où } L \text{ est le périmètre de la cavité en anneau}$$

Par conséquent, le déplacement en fréquence dv consécutif à un allongement de la cavité dL vaut :

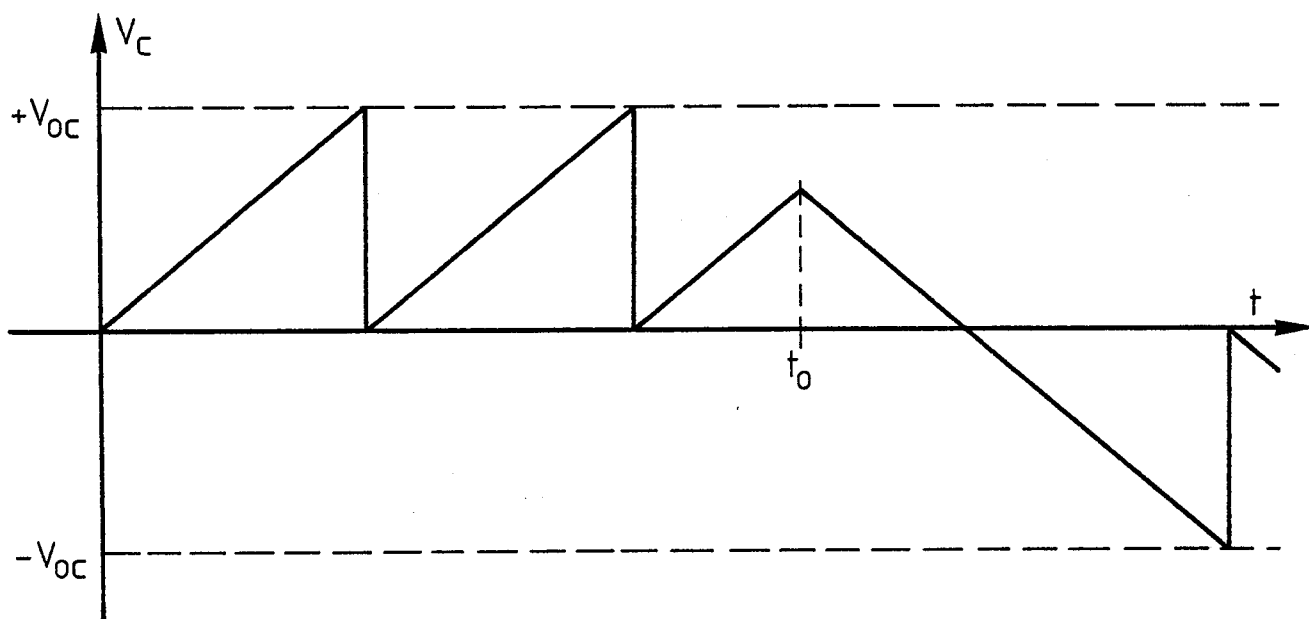
$$dv = -v_c \frac{dL}{L}$$

Ce qui veut dire que plus la cavité est longue, plus il faut provoquer un allongement important pour un déplacement en fréquence dv donné. Dans notre cas, la céramique a une dynamique $\frac{dL}{2}$ de l'ordre de $1 \mu\text{m}$ et la longueur de la cavité L est $1,5 \text{ m}$, par conséquent, à la longueur d'onde de 730 nm ,



a - configuration des modes du F.P.E. et de la cavité au cours d'un cycle de balayage du miroir de la cavité

tension appliquée à la céramique de la cavité



b - tension V_c au cours d'un changement du sens de balayage

figure 20.

le balayage serait limité à $\Delta\nu \approx 550$ MHz, ce qui est beaucoup trop faible. Pour supprimer cette limitation, on utilise le principe suivant.

La tension V_c appliquée à la céramique de la cavité a une allure de dents de scie (figure 20). Au cours des phases (1) et (2), l'augmentation de V_c permet un balayage linéaire et simultané du F.P.E. et de la cavité. Au cours de la phase (3), V_c revient brusquement à zéro, le mode de la cavité, a, reprend sa position initiale et pour peu que la constante de temps de l'assevissement du F.P.E. soit suffisamment grande, le pic de transmission de l'étalon ne change pas de fréquence. En recommençant ainsi le cycle de nombreuses fois, on déplace uniformément la fréquence d'émission du laser. Le saut de mode de la phase (3) doit avoir lieu exactement lorsque le mode a vient en coïncidence avec le mode b (en phase (1)), si on ne veut pas avoir d'irrégularité dans le balayage (cependant, lorsque la fréquence du laser est asservie par le sigmamètre, celui-ci rattrappe automatiquement les glissements de fréquence qui pourraient résulter de ces irrégularités) ; à l'aide d'un système à seuil, on opère ce réglage en donnant une plus ou moins grande amplitude V_{oc} au cycle de balayage de la cavité. Le changement du sens de balayage est obtenu en inversant à la fois la pente de la dent de scie et le signe du seuil V_{oc} .

Pour réaliser une sélection de mode plus stricte, la cavité comporte également un étalon mince dont il convient de déplacer la bande passante en même temps que l'on déplace

le mode de la cavité. Cet étalon d'épaisseur environ 0,45 mm est supporté par un galvanomètre dont l'axe de rotation est orthogonal au faisceau laser. Comme nous l'avons fait remarquer au paragraphe précédent, le balayage du laser est linéaire en fréquence ; pour que le déplacement de la bande passante soit synchronisé sur celui de la fréquence, l'angle de rotation du galvanomètre doit suivre une loi quadratique. En effet, si ν_c est la fréquence de la cavité transmise par l'étalon mince, on a la relation :

$$\nu_c = \frac{kc}{2ne \cos \beta}$$

où k est un entier, n l'indice de réfraction de l'étalon, e son épaisseur et β l'angle de réfraction à l'intérieur de l'étalon. Si θ est l'angle d'incidence externe du faisceau laser, ν_c est alors donné par : (en considérant que θ est petit)

$$\nu_c = \frac{kc}{2ne} \left(1 + \frac{\theta^2}{2n^2} \right)$$

En partant d'une valeur nulle de θ , on a :

$$\nu_c - \nu_{co} = \frac{kc}{2ne} \cdot \frac{\theta^2}{2n^2}$$

L'alimentation en courant du galvanomètre comporte donc un élément qui transforme le signal proportionnel à $(\nu_c - \nu_{co})$ provenant du sigmamètre en un signal proportionnel à $\sqrt{\nu_c - \nu_{co}}$.

La limitation de la dynamique de balayage provient en fait de l'amplitude du déplacement possible avec la céramique du F.P.E.. Avec la tension maximum applicable sur cette

céramique (± 500 V) on peut faire défiler 210 modes de l'analyseur de modes sans qu'il y ait de sauts de la fréquence du laser (on retouche toutefois manuellement au filtre de Lyot). Sachant que l'intervalle entre ordres de cet interféromètre est 750 MHz, ceci correspond à une dynamique de balayage de 157 GHz, soit $5,2 \text{ cm}^{-1}$.

II.5. LE FONCTIONNEMENT DE LA CAVITE EN ANNEAU EN MODE INJECTE

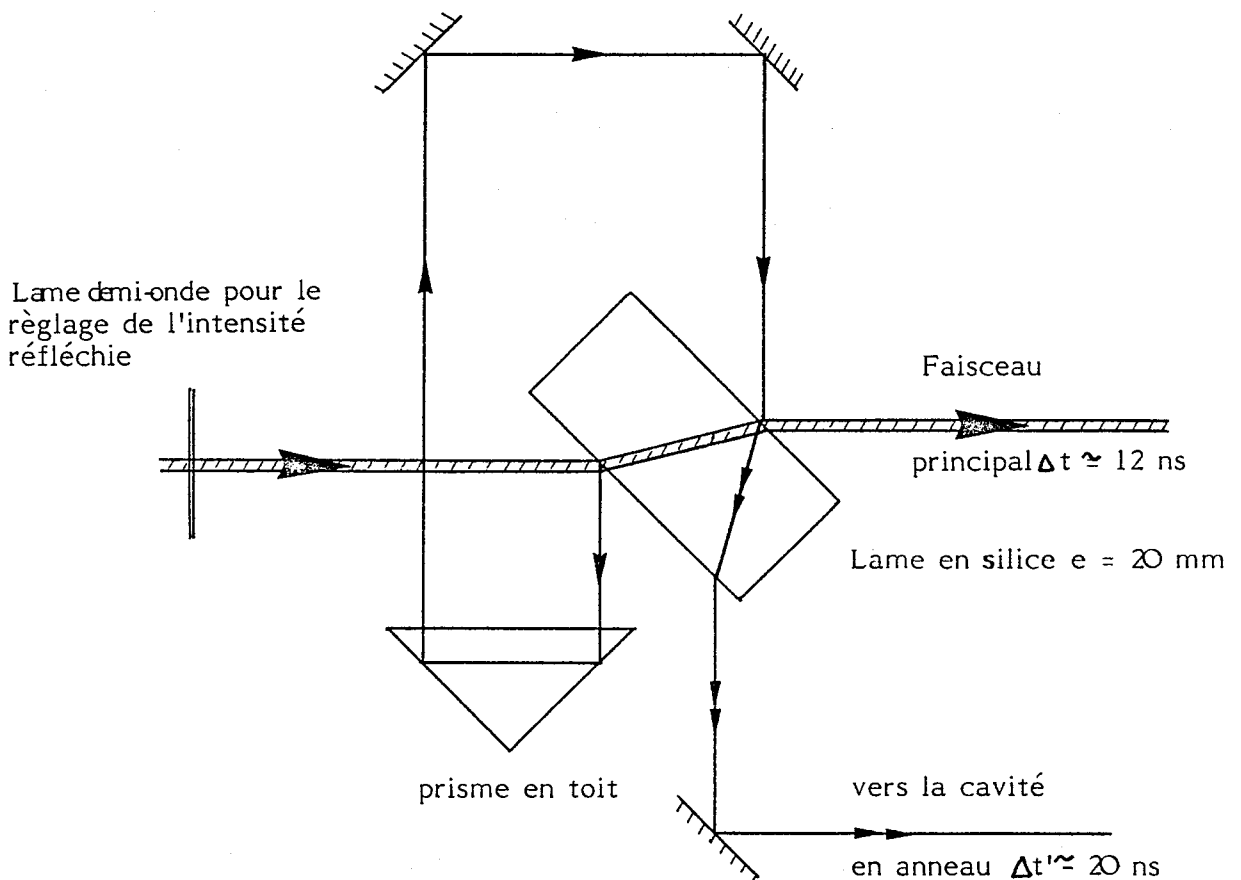
Le fonctionnement correct de la cavité en mode injecté pose un certain nombre de problèmes liés d'une part à la longueur de la cavité et d'autre part à la forte perturbation que provoque l'impulsion laser sur la cellule à colorant intra-cavité.

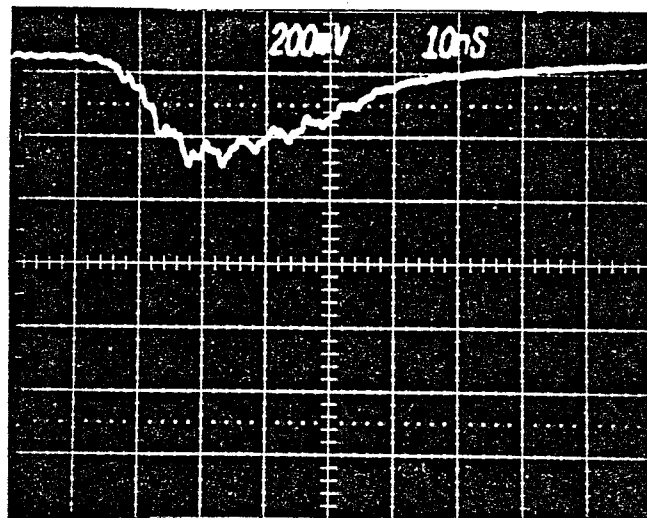
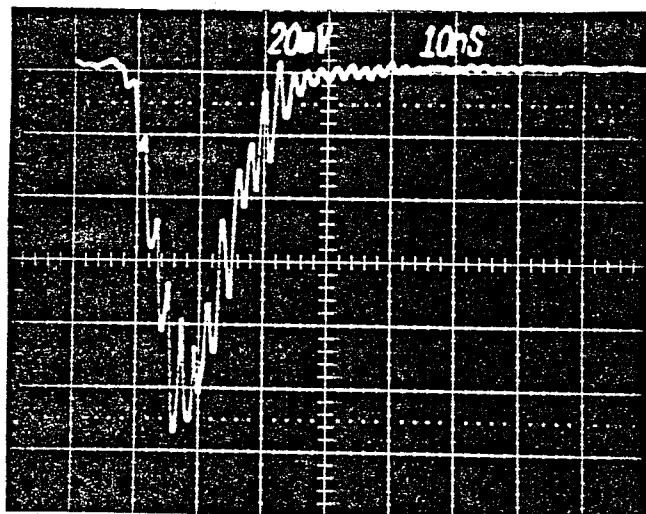
II.5.1. Problèmes liés à la longueur de la cavité

La cavité dont nous disposons a une longueur d'environ 150 cm et l'impulsion lumineuse délivrée par le laser Nd : YAG doublé a une largeur à mi-hauteur de 12 ns. On conçoit bien dans ces conditions que l'impulsion créée dans la cavité ne peut être amplifiée efficacement que sur un nombre très limité de passages dans le milieu amplificateur : environ 3 dans notre cas.

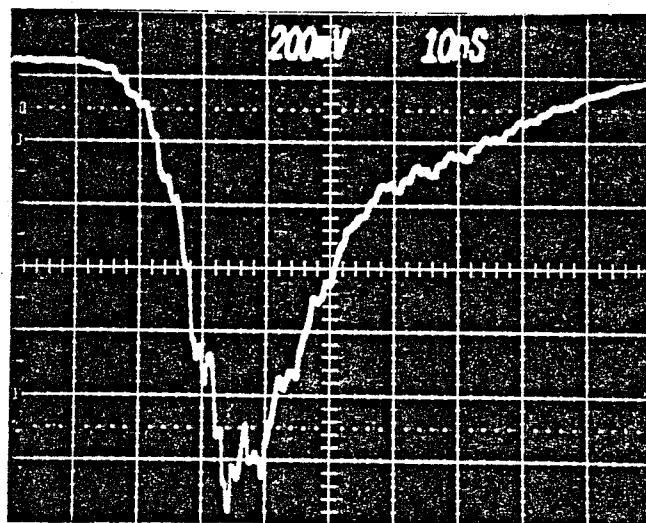
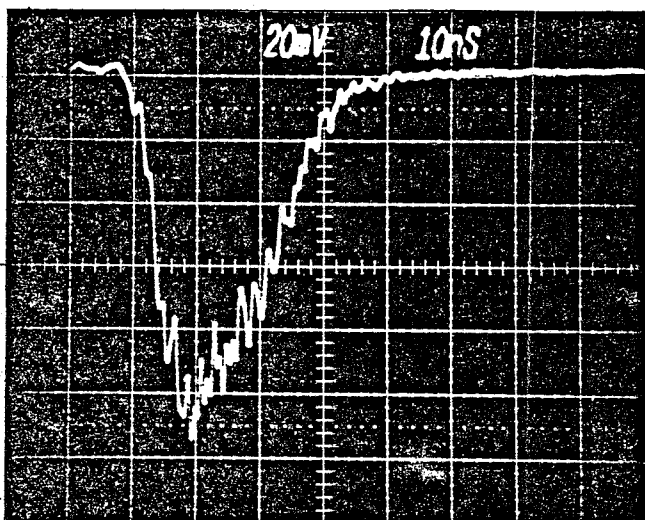
Nous avons étudié en détail à la section II.2.2 le mécanisme de formation de l'impulsion lumineuse dans une cavité soumise à un rayonnement injecté. Il est clair, d'après cette étude que pour des impulsions de faible durée, le fait d'augmenter la durée de l'impulsion d'un facteur 2 doit permettre de gagner un facteur beaucoup plus important sur la puissance crête émise.

Pour augmenter artificiellement la durée de l'impulsion nous avons séparé le faisceau en deux parties puis recombina ces deux parties après avoir fait parcourir un chemin plus long à l'un des deux faisceaux. Comme l'excitation sur la cellule doit être modérée, (quelques millijoules par impulsion) nous avons utilisé les deux réflexions du faisceau principal sur les faces nues d'une lame en silice, d'après le schéma suivant :





impulsion courte



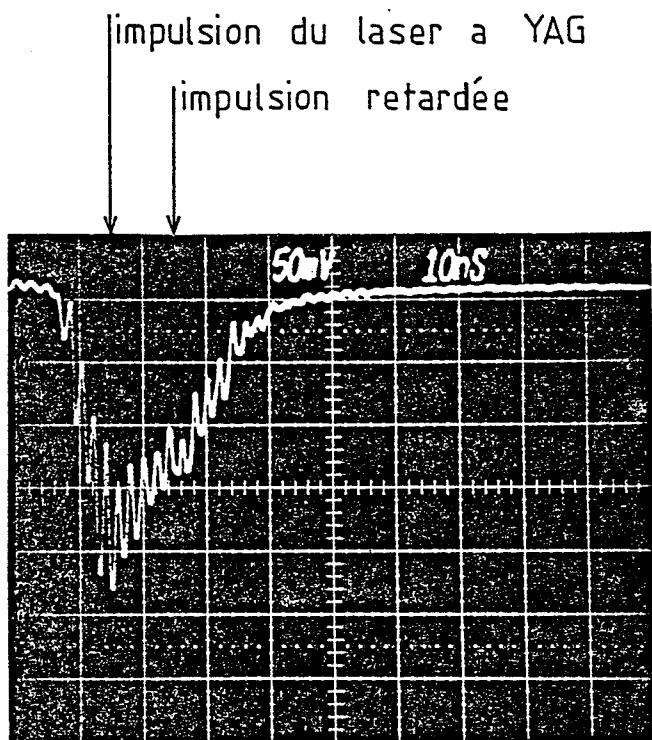
impulsion doublée

↑
excitation Nd:YAG
($\lambda = 532 \text{ nm}$)

↑
sortie de la cavité
en anneau ($\lambda = 730 \text{ nm}$)

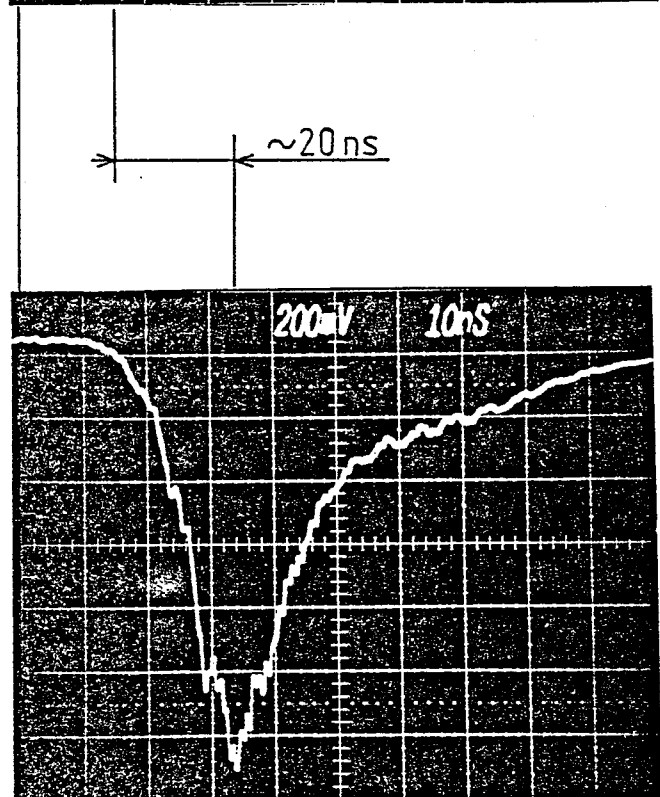
FIGURE 21 structure temporelle des impulsions
influence de l'allongement du temps d'excitation

excitation de la cellule à colorant intracavité



$\lambda = 532 \text{ nm}$

FIGURE 21 bis



$\lambda = 730 \text{ nm}$

impulsion à la sortie de
la cavité en anneau

déclenchement de la cellule
de Pockels du laser à YAG

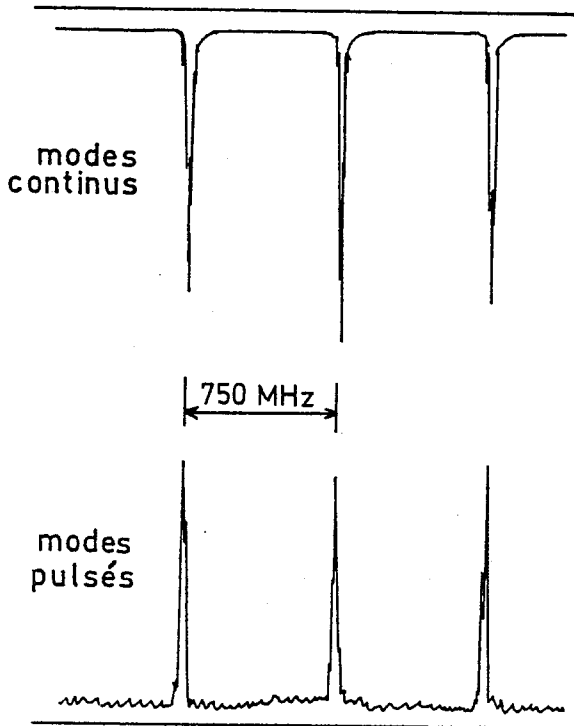
La différence de chemin entre les deux parcours est de 3 m environ, ce qui fait passer la largeur de l'impulsion de $\Delta t = 12$ ns à $\Delta t' = 20$ ns. Le réglage de superposition est délicat, mais ce montage permet d'obtenir un gain substantiel illustré par la figure (21). Nous avons été confrontés par ailleurs à un autre problème du même ordre puisque l'impulsion ne se construit pas instantanément dans la cavité ; il en résulte que l'impulsion d'excitation n'est pas synchrone de l'impulsion émise par l'oscillateur, l'écart temporel est d'environ 20 ns (fig. 21bis). Pour compenser cet écart, il nous a fallu installer une ligne à retard de 7 m sur le faisceau principal du laser à YAG de façon à pouvoir pomper correctement les amplificateurs disposés à la suite.

II.5.2. Problèmes liés à la perturbation du milieu amplificateur par l'impulsion du laser à YAG

Avec la cavité en anneau, nous avons observé que, l'émission laser continue s'interrompt pendant environ 200 μ s après l'impulsion d'excitation du laser à YAG sur la cellule intracavité. Nous n'avons pas rencontré de problème aussi important lors de la réalisation d'un montage similaire avec une cavité linéaire.

En réalité ce phénomène n'est pas fondamentalement dramatique puisque nous avons vérifié : 1) que l'impulsion émise l'est bien sur le mode du laser continu qui existe dans la cavité avant l'établissement de l'impulsion, 2) que

l'oscillation laser se rétablit bien sur le même mode après l'interruption qu'avant l'impulsion. Il suffit pour s'en convaincre d'examiner les franges de l'interféromètre Fabry-Perot (sphérique) enregistrées simultanément en continu et en impulsion.



On remarque, compte-tenu du décalage des plumes de l'enregistreur, qu'il n'y a pas de déplacement appréciable de la fréquence de l'émission pulsée par rapport à l'émission continue (ce déplacement était de l'ordre de 40 MHz avec une cavité linéaire). D'autre part, la largeur spectrale n'est pas sensiblement plus importante en impulsion qu'en continu, dans la limite imposée par la finesse de l'inter-

féromètre d'analyse, ici environ 35 MHz. Ceci est tout à fait logique à ce niveau puisque la durée de l'impulsion étant de 20 ns, la largeur spectrale théorique est de 20 MHz. Nous n'avons pas trouvé d'explication satisfaisante à la différence de comportement entre cavité linéaire et cavité en anneau. Il faudrait sans doute rechercher l'origine de ce phénomène d'extinction en examinant les critères de stabilité de la cavité en anneau dont nous disposons [43,44]. Il est cependant vraisemblable, compte tenu de la sensibilité au

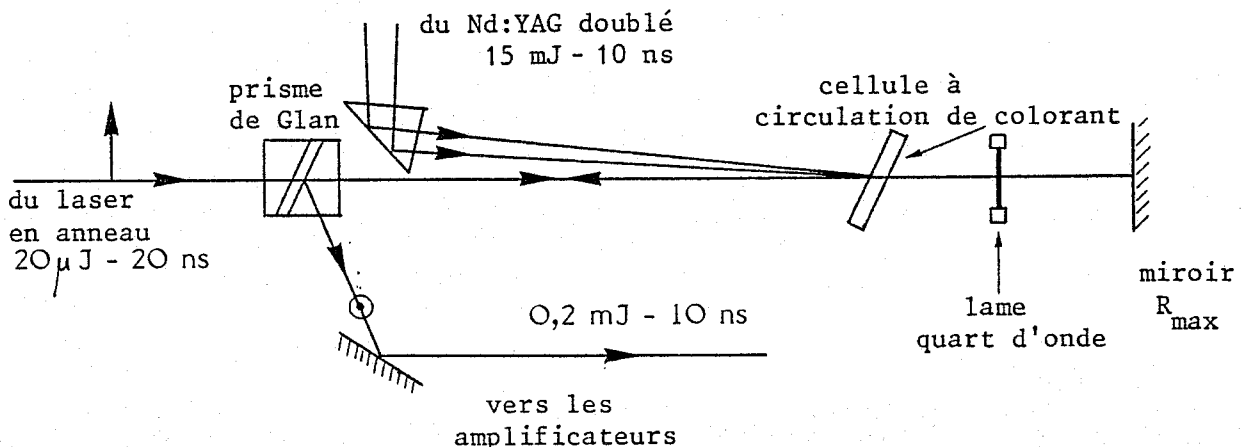
réglage que nous avons observé, que la cavité en anneau a une zone de stabilité plus étroite que la cavité linéaire. [42 à 45]

II.6. LA CHAÎNE D'AMPLIFICATION ET LE DOUBLAGE DE FREQUENCE

Le colorant adapté à la fois à la longueur d'onde d'émission à 730 nm et à la longueur d'onde de pompage du laser à YAG à 532 nm est la Pyridine 2 (LDS 722). Malheureusement il n'y a pas eu à ce jour d'étude systématique des caractéristiques de ce colorant (sections efficaces, temps de fluorescence), si bien qu'il ne nous a pas été possible de déterminer à l'avance les meilleures conditions de fonctionnement du système d'amplification. Cependant la méthode empirique donne de bons résultats après quelques tâtonnements.

Le montage amplificateur que nous avons adopté comporte quatre étages d'amplification : un préamplificateur à double passage et deux amplificateurs de puissance.

II.6.1. Le préamplificateur



Dans la mesure où l'intensité du laser à amplifier est faible on peut profiter du fait qu'un seul passage dans le milieu amplificateur ne sature pas le gain du milieu pour effectuer un deuxième passage avec un gain équivalent. C'est pourquoi nous avons choisi un montage à double passage comme premier étage d'amplification : c'est l'équivalent de deux amplificateurs avec l'encombrement d'un seul et le rapport signal sur fond de fluorescence n'est pas plus important.

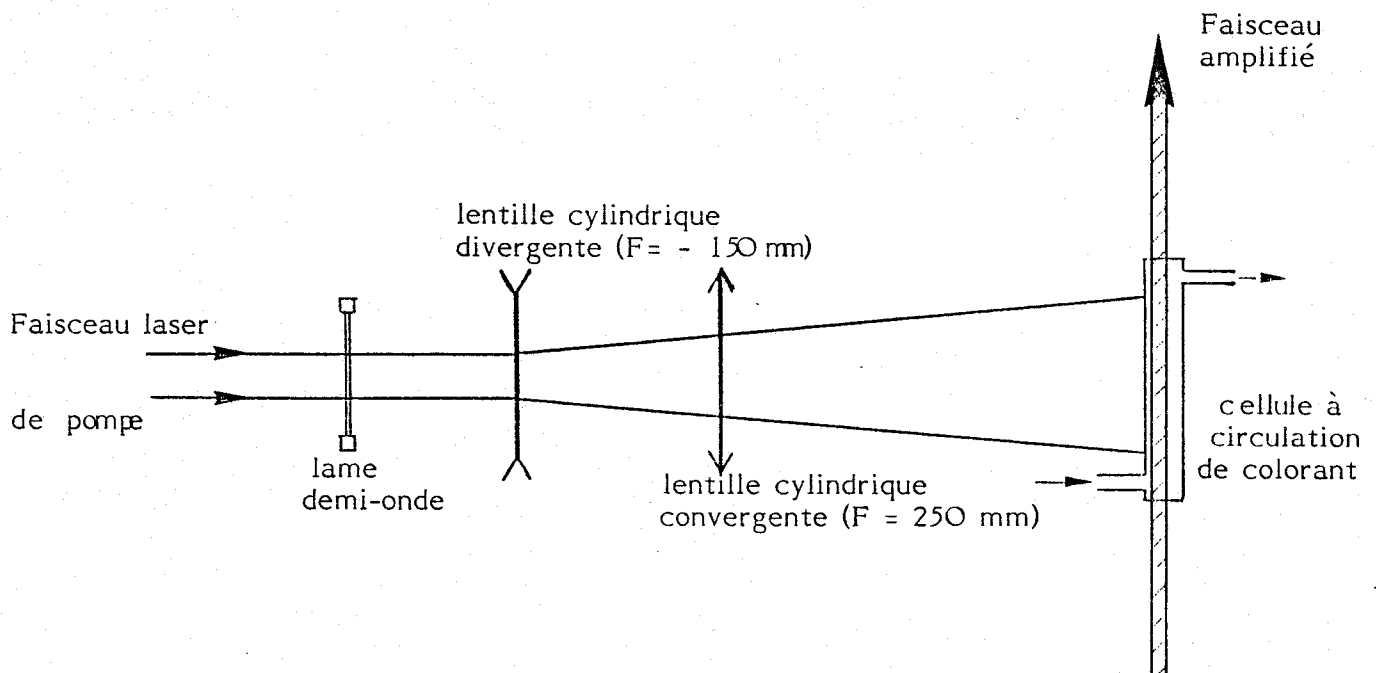
L'impulsion laser provenant du laser en anneau a une polarisation horizontale transmise par le prisme de glan. Le double passage à travers la cellule de colorant se fait par l'intermédiaire d'un miroir totalement réfléchissant et d'une lame quart d'onde adaptée à la longueur d'onde de 730 nm. La polarisation initiale se trouve donc tournée de $\pi/2$ et au retour le faisceau laser est réfléchi latéralement par le prisme de glan. La longueur d'onde de fonctionnement du système actuel étant pratiquement fixe, une lame quart d'onde suffit pour opérer correctement la rotation de $\pi/2$ de la polarisation. Si un balayage de la longueur d'onde de grande amplitude était nécessaire il faudrait employer un montage achromatique (prisme de Fresnel). Le montage non achromatique actuel empêche également une grande partie de la fluorescence d'être réfléchie vers les amplificateurs alors qu'elle ne perturbe pas le système en amont.

La cellule à colorant que nous avons adoptée ici est du même type que la cellule intracavité du laser en anneau. Nous avons essayé des cellules de forte épaisseur (5 et

10 mm) mais la perturbation du liquide par le faisceau de pompe était telle que le faisceau lumineux en sortie était très déformé. Nous avons donc réduit l'épaisseur à 1 mm tout en augmentant la vitesse du liquide à l'intérieur de la cellule : la dégradation du faisceau lumineux n'est plus apparente.

Avec une énergie du faisceau de pompe de 15 mJ, le gain global du préamplificateur à double passage est d'environ 20. Cette valeur est faible et limitée certainement par l'épaisseur de la cellule ; cependant, étant donné les possibilités du reste de la chaîne d'amplification, il était primordial ici de préserver la bonne qualité du faisceau. C'est pour cette même raison que nous avons choisi un mode de pompage longitudinal.

II.6.2. Les amplificateurs de puissance



Le choix entre le mode d'excitation transversal ou longitudinal est ici moins évident. Avec une excitation transversale on a l'avantage de pouvoir optimiser les paramètres d'excitation (intensité de pompage, forme du faisceau) sans avoir à toucher aux paramètres du faisceau à amplifier. De plus, si on évite de trop concentrer le colorant, la forme du faisceau amplifié est peu détériorée par les différences d'absorption du faisceau de pompe à l'intérieur de la cellule. Nous avons donc opté pour une excitation transversale qui nous a donné toute satisfaction.

Le faisceau de pompe peut être étalé à volonté en réglant la position d'une lentille cylindrique divergente, puis focalisé avec la dimension et l'orientation voulues à l'aide d'une lentille cylindrique convergente.

Une lame demi-onde permet d'orienter la polarisation du laser de pompe parallèlement à celle du laser à amplifier. Il est nécessaire de remplir cette condition qui procure un gain d'au moins 50 % par rapport à la situation où les polarisations sont perpendiculaires. L'explication de ce phénomène est liée à la disposition relative des moments de transitions des molécules (due au pompage) et de la polarisation de la transition laser. Compte tenu de la taille des molécules et de la viscosité du solvant, le temps de relaxation rotationnelle est long comparé à la durée de l'impulsion [109].

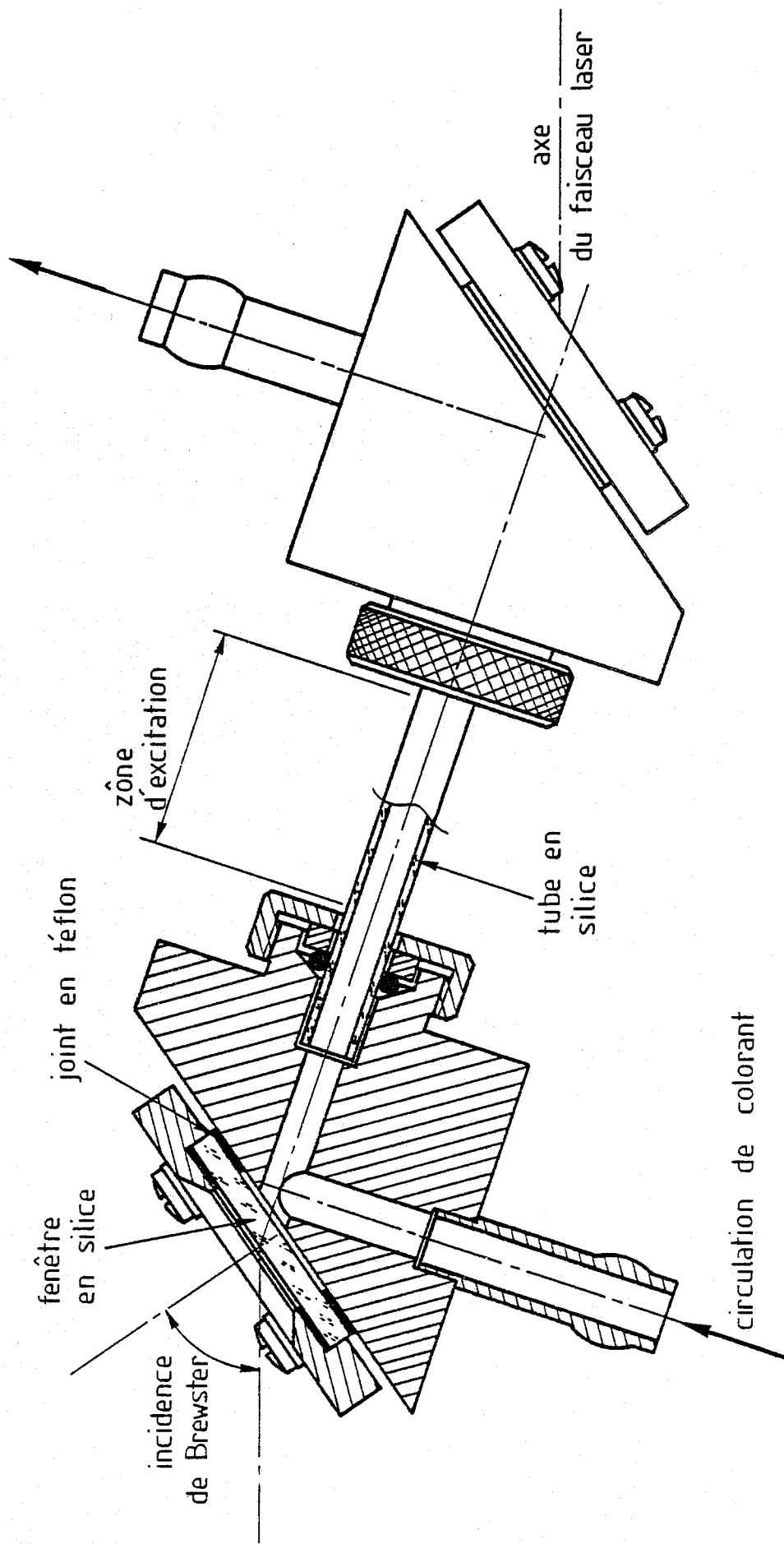


figure 22 coupe d'une cellule d'amplification (échelle 2)

La figure (22) est une coupe de l'amplificateur utilisé pour le premier étage de puissance. Les fenêtres disposées à l'incidence de Brewster évitent d'avoir à faire un traitement anti-reflet et favorisent une bonne conservation de la polarisation. Le deuxième amplificateur de puissance lui est identique excepté le diamètre intérieur du tube capillaire (5 mm au lieu de 3 mm), le faisceau laser ayant un diamètre plus grand à ce niveau.

Le tableau ci-dessous résume les performances des amplificateurs.

	Préamplificateur	1 ^{er} amplificateur de puissance	2 ^{ème} amplificateur de puissance
Energie de pompage	15 mJ	90 mJ	250 mJ
Section du faisceau de pompage	1 mm ²	12 mm ²	50 mm ²
Longueur excitée	1 mm	8 mm	20 mm
Durée de l'impulsion	12 ns	12 ns	12 ns
Puissance à l'entrée	1 kW	20 kW	0,7 MW
Puissance à la sortie	20 kW (0,2 mJ)	700 kW (7 mJ)	5 mW (50 mJ)
Gain	20	35	7

Colorant : Pyridine 2, solvant : méthanol

II.6.3. Le doublage de fréquence

Les effets non linéaires à l'ordre deux sont maintenant exploités couramment dans les systèmes laser impulsion-

nels (et même continus), c'est pourquoi nous examinerons très succinctement la partie doublage de fréquence de notre montage.

Dans un milieu matériel, la polarisation diélectrique créée par un champ électrique \vec{E} de grande intensité se développe suivant les puissances de \vec{E} :

$$P = \epsilon_0 [\chi^{(1)} \vec{E} + \chi^{(2)} \vec{E}\vec{E} + \chi^{(3)} \vec{E}\vec{E}\vec{E} \dots].$$

où $\chi^{(n)}$ est la susceptibilité d'ordre n.

Le terme d'ordre deux est à l'origine des effets non linéaires du type doublage de fréquence, mélange de deux fréquences, amplification paramétrique, etc... Dans un cristal non centro-symétrique, la polarisation d'ordre deux induite par un champ électrique \vec{E} (E_x, E_y, E_z) s'écrit explicitement :

$$P_i = \epsilon_0 \sum_{j,k=1}^3 \chi_{ijk}^{(2)} E_j E_k, \quad i,j,k = 1,2,3 (x,y,z)$$

où P_i est la $i^{\text{ème}}$ composante de la polarisation diélectrique $\vec{P} = \{P_x, P_y, P_z\}$. $\chi_{ijk}^{(2)}$ est un tenseur dont les composantes dépendent des propriétés de symétrie du cristal. Par exemple, pour le KDP, qui appartient au groupe de symétrie cristalline $\bar{4}2m$, les seules composantes non nulles du tenseur de susceptibilité sont :

$$\chi_{xyz}^{(2)} = d_{14} \quad \chi_{yxz}^{(2)} = d_{25} \quad \text{et} \quad \chi_{zxy}^{(2)} = d_{36}$$

En utilisant par ailleurs la règle de symétrie $\chi_{ijk} = \chi_{ikj}$, les composantes de la polarisation induite se réduisent

à (avec $d_{14} = d_{25}$) :

$$P_x = 2\epsilon_0 d_{14} E_y E_z \quad P_y = 2\epsilon_0 d_{14} E_x E_z \quad P_z = 2\epsilon_0 d_{36} E_x E_y$$

Si de plus on s'arrange pour que le vecteur champ électrique $\vec{E}(\nu)$ de l'onde incidente soit dans le plan xOy (à 45° des axes), alors $E_z = 0$ et il subsiste seulement la composante P_z de la polarisation diélectrique qui agit comme une nouvelle source de rayonnement à la fréquence 2ν :

$$P_z(2\nu) = 2\epsilon_0 d_{36} E_x(\nu) \cdot E_y(\nu).$$

Le faisceau engendré a un vecteur $\vec{E}(2\nu)$ dirigé suivant z donc perpendiculaire au vecteur $\vec{E}(\nu)$ (accord de phase de type I). Pour que les contributions microscopiques des sources de rayonnement dues à chaque atome s'ajoutent pour donner une contribution macroscopique, il faut satisfaire aux conditions d'accord de phase. Celles-ci sont en réalité des conditions de conservation de l'impulsion sur toute la longueur de propagation des ondes dans le milieu. Elles se réduisent à :

$$\vec{k}(2\nu) = 2\vec{k}(\nu)$$

dans le cas du doublage de fréquence : les vitesses de phase des ondes aux fréquences 2ν et ν doivent être les mêmes dans le cristal. Ceci est réalisable dans les cristaux biréfringents (tels que le KDP) à condition de pouvoir satisfaire à :

$$n_e(2\nu) = n_o(\nu) \quad (\text{dans un cristal uniaxe négatif})$$

où n_e et n_o sont les indices de réfraction extraordinaire et ordinaire du cristal.

On peut réaliser cette condition de façon aisée par rotation du cristal autour d'un axe perpendiculaire à l'axe optique. Dans ces conditions, l'indice de l'onde à la fréquence 2ν (onde extraordinaire) est donnée par la relation :

$$\frac{1}{n_e(\theta)^2} = \frac{\cos^2\theta}{n_o^2} + \frac{\sin^2\theta}{n_e^2}$$

où θ est l'angle entre l'axe optique et le vecteur d'onde $\vec{k}(\nu)$ du faisceau incident. Dans les cas favorables, l'accord de phase est réalisé pour $\theta = 90^\circ$, ce qui offre l'avantage que les faisceaux aux fréquences ν et 2ν se propagent colinéairement. Dans le cas général, la zone de recouvrement des faisceaux est plus faible, d'où une diminution du rendement. Dans les cas où pour la fréquence 2ν désirée, θ est proche de 90° , on a donc intérêt à effectuer un accord de phase en agissant sur la température du cristal de façon à retrouver la condition la plus favorable $\theta = 90^\circ$.

En ce qui concerne notre expérience, nous avons utilisé un cristal de KDP d'une longueur de 35 mm monté dans une cellule contenant un liquide d'indice (fréon) et fermée par des fenêtres en silice traitées anti-reflet ; c'est un cristal commercial taillé pour fonctionner en doubleur de fréquence entre 590 et 740 nm avec ses faces sensiblement perpendiculaires au faisceau incident. A la longueur d'onde de 730 nm, l'angle entre l'axe optique et la direction de propagation du faisceau laser est $\theta = 48^\circ$ [15].

L'intensité lumineuse obtenue après doublage est proportionnelle au carré de l'intensité du faisceau fondamental, on a donc intérêt à envoyer le maximum de puissance sur le cristal non-linéaire (dans la limite de la résistance du cristal au rayonnement qui est de l'ordre de 1 GW/cm^2). Par ailleurs les conditions d'accord de phase sont sensibles à la divergence du faisceau. Dans notre montage, nous avons ajouté une lentille de longue focale (4 m) de façon à réduire cette divergence.

Dans ces conditions, nous avons noté les performances suivantes :

Puissance crête du faisceau fondamental ($\varnothing \approx 2,5 \text{ mm}$)	5 MW	(10 ns)
Puissance crête du faisceau doublé	1,5 MW	(10 ns)
Rendement	0,3	

Le rendement obtenu est très bon et rend compte de la bonne qualité géométrique du faisceau fondamental et du faible taux de fluorescence qui y est superposé.

Nous avons également fait un essai avec un cristal d'urée de longueur 10 mm. L'urée a de très bons coefficients non-linéaires mais on n'arrive que difficilement à obtenir des cristaux de dimensions supérieures à 10 mm, ce qui limite le rendement que l'on peut en tirer. Par ailleurs, ces cristaux sont hygroscopiques et on doit impérativement les plonger dans un liquide d'indice (décaline ou hexane) dès qu'ils sont polis. Comme le KDP, l'urée fait partie du groupe de symétrie $\bar{4}2m$ [46,47].

L'échantillon dont nous disposons est taillé en type II, c'est-à-dire que le faisceau fondamental est formé par la superposition de deux faisceaux dont les polarisations sont perpendiculaires ; l'une suivant Oz (rayon extraordinaire), l'autre dans le plan xOz (rayon ordinaire). Le faisceau engendré a une polarisation dans le plan xOz (rayon ordinaire).

L'angle θ correspondant à l'accord de phase à la longueur d'onde de 730 nm est de 40° . Avec l'urée nous avons noté les performances suivantes (cristal dans une cellule non traitée, liquide d'indice : décaline) :

Puissance crête du faisceau fondamental ($\varnothing \approx 2,5$ mm)	4,5 MW	(10 ns)
Puissance crête du faisceau doublé	1 MW	(10 ns)
Rendement	0,22	

Le rendement légèrement moins bon qu'avec le KDP, est cependant satisfaisant compte-tenu du fait que le cristal est nettement plus court.

Nous avons réalisé toutes les expériences sur l'hydrogène avec le cristal KDP.

Distribution spatiale de l'intensité (faisceau à la longueur d'onde de 365 nm).

La forme de ce faisceau a une importance primordiale pour le triplage de fréquence. Il faut éviter en particulier les surintensités et les trous qui provoquent à la fois des saturations (claquages) et une répartition très inhomogène

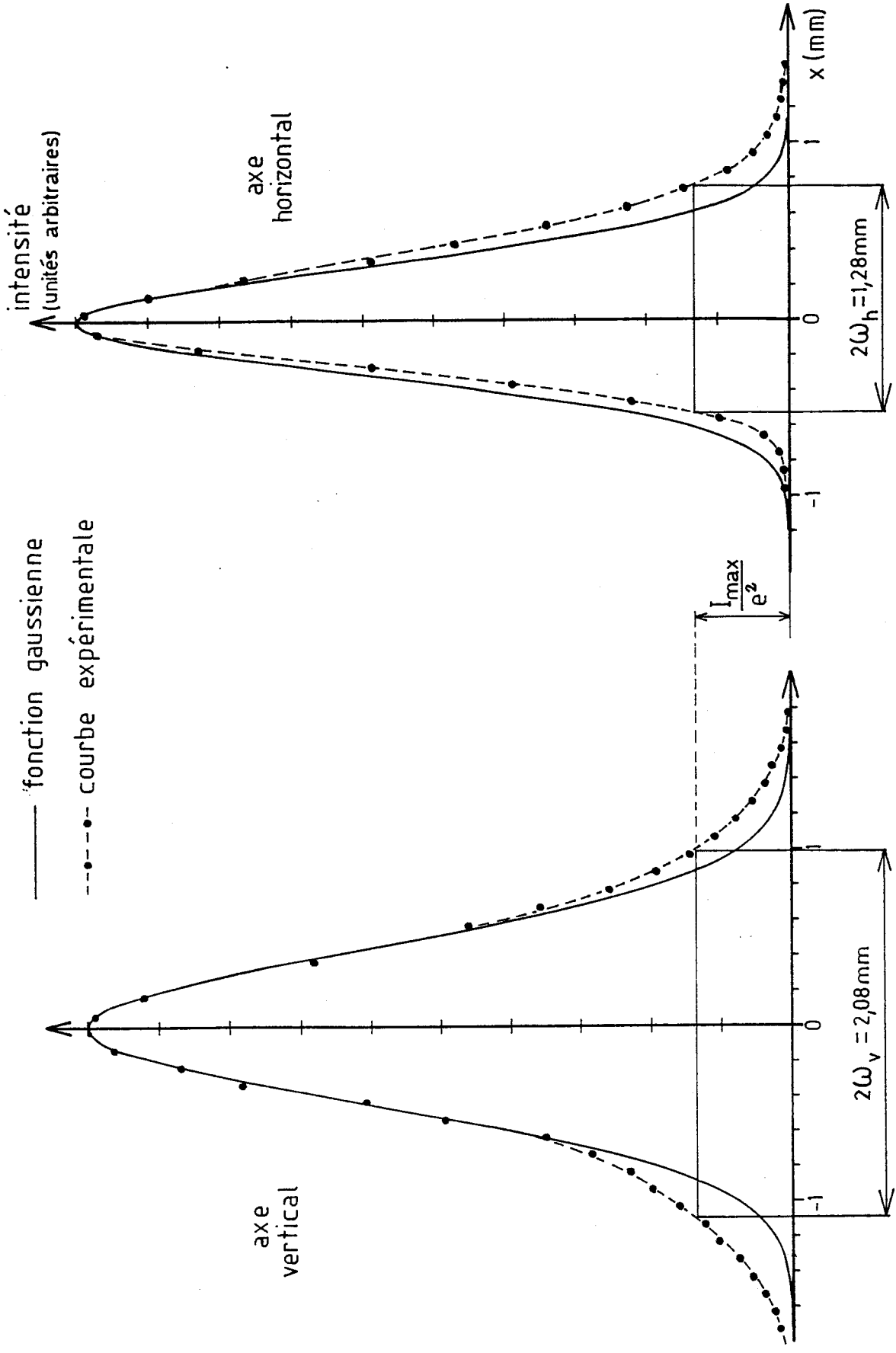


FIGURE 22bis distribution spatiale de l'intensité dans le faisceau ultra-violet ($\lambda=365\text{nm}$)

de l'intensité du faisceau à la fréquence triple. Pour se rapprocher au mieux des conditions expérimentales idéales telles qu'elles seront exposées au chapitre suivant, la distribution spatiale de l'intensité doit être proche d'une distribution gaussienne.

L'analyse de la répartition d'intensité a été faite à l'aide d'un diaphragme de faible diamètre ($25 \mu\text{m}$) placé devant une photodiode travaillant loin de la saturation. Un filtre éliminant toutes les autres longueurs d'ondes existant dans le système a également été disposé entre le trou et la photodiode. Cet ensemble a été rendu solidaire de deux platines micrométriques possédant des axes de translation perpendiculaires (l'un vertical, l'autre horizontal).

Les résultats de cette analyse sont exposés sur la figure 22bis. Suivant chaque axe, on a tracé la courbe représentant la fonction gaussienne la plus proche des points expérimentaux.

On note, suivant l'axe horizontal, une légère dissymétrie et suivant l'axe vertical un élargissement dans le pied du faisceau. Par ailleurs, il existe une différence notable de la taille des faisceaux suivant les deux axes. Tous ces effets s'expliquent essentiellement par le type d'accord de phase au doublage de fréquence (angulaire, non colinéaire). Pour l'onde extraordinaire, le vecteur de Poynting et la direction de propagation de l'onde ne sont pas colinéaires (sauf lorsque la propagation s'effectue à 90° de l'axe optique) alors qu'ils le sont pour l'onde ordinaire. Cet ef-

fet, dû à la double réfraction, provoque une déformation de la distribution d'intensité du faisceau à la fréquence double [108] qui est tout à fait analogue à celle que l'on observe expérimentalement.

La forme d'ensemble du faisceau U.V. est très satisfaisante ; elle ne présente ni surintensité ni trous et diffère peu d'une distribution gaussienne suivant chacun des axes. Les valeurs réelles de la taille du faisceau sont (à $1/e^2$ du maximum de la distribution d'intensité) :

- suivant l'axe vertical : $\omega_V = 1,04$ mm
- suivant l'axe horizontal : $\omega_H = 0,64$ mm.

II.7. LE SYSTEME DE SYNCHRONISATION DES DEUX ETAGES LASER

Pour atteindre la limite d'ionisation (ou les niveaux de Rydberg) à partir du niveau excité 2p de l'hydrogène nous avons besoin d'un deuxième étage dont la longueur d'onde est grossièrement de 365 nm soit trois fois la longueur d'onde de Lyman α . Cette longueur d'onde nous est fournie par un ensemble laser identique à celui que nous venons de décrire si ce n'est la cavité continue qui pour ce deuxième étage est une cavité linéaire.

Les impulsions lumineuses délivrées par ces deux lasers ont des durées de l'ordre de 10 ns et par ailleurs la durée de vie du niveau intermédiaire 2p est de 1,6 ns. Ceci impose que les impulsions arrivent dans la zone d'interac-

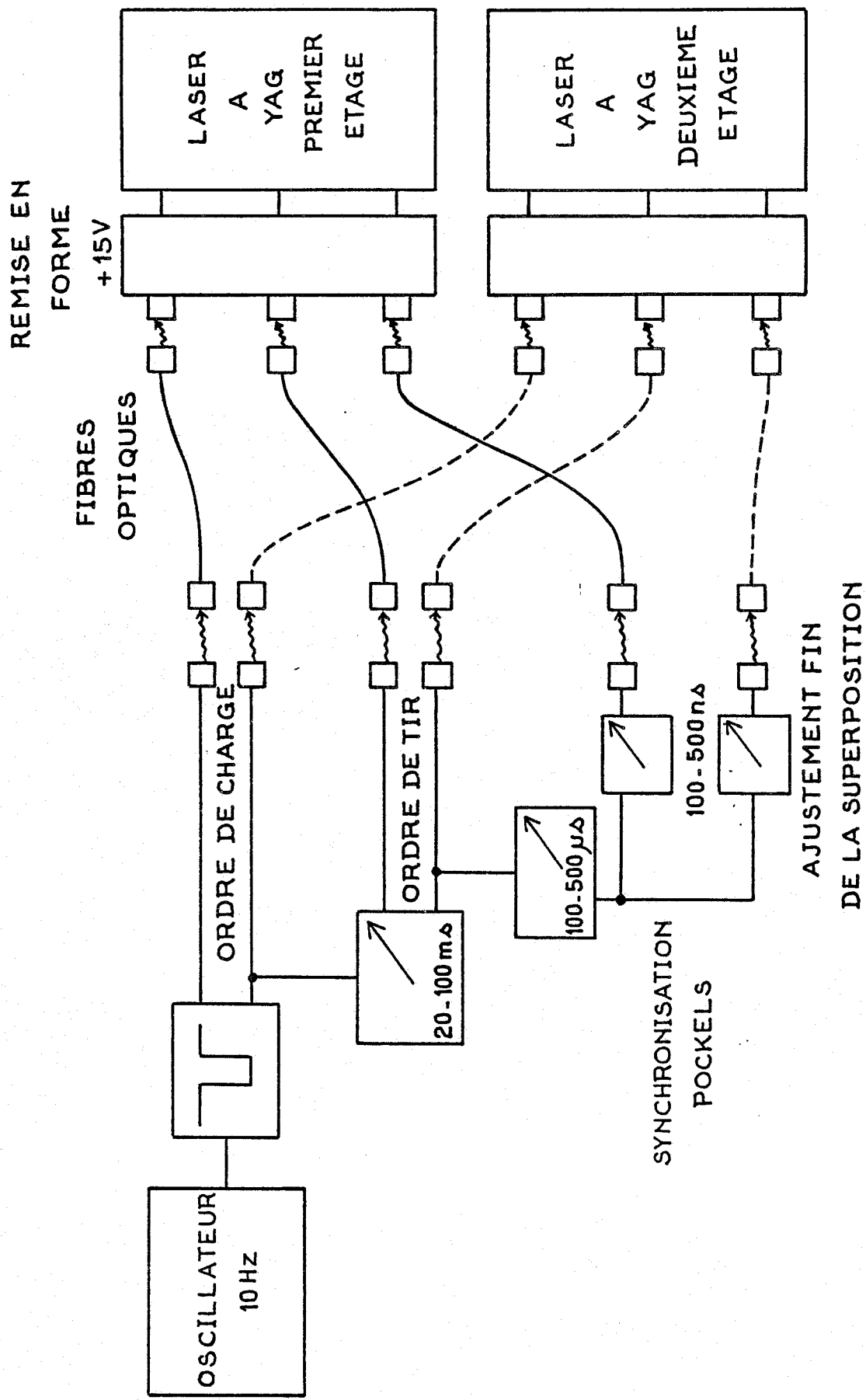


FIGURE 23 système de déclenchement des deux lasers à YAG à l'aide de liaisons par fibres optiques

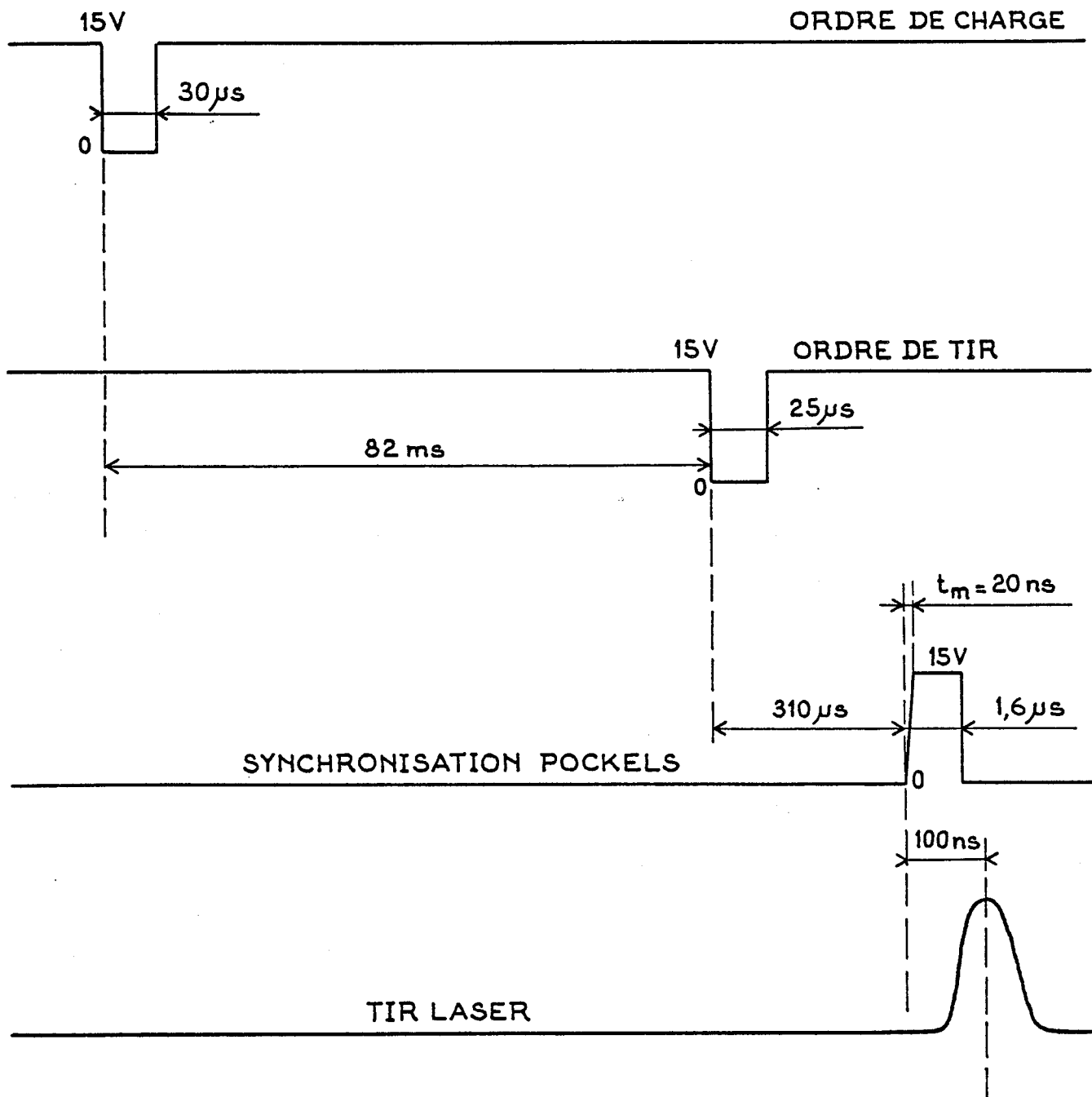


FIGURE 24

tion parfaitement superposées dans le temps ou tout au plus peut-on tolérer 1 à 2 ns de décalage.

Il y a deux moyens d'arriver à une telle précision : soit on utilise un seul laser à YAG pour pomper les deux systèmes, soit on agit de façon synchronisée sur les cellules de pockels des deux lasers à YAG. Nous n'avons pas retenu la première solution parce que nous avons besoin de toute la puissance du laser à YAG du premier étage pour effectuer le triplage de fréquence.

La réalisation d'une synchronisation de deux lasers à YAG avec une précision de l'ordre de la nanoseconde est rendue extrêmement difficile à cause des parasites électromagnétiques rayonnés par la haute tension de déclenchement des lampes flash. La liaison par câbles coaxiaux entre une horloge commune aux deux lasers et les cellules de Pockels est donc de mise en oeuvre très délicate. Nous avons préféré établir ces liaisons par fibres optiques.

Les fibres utilisées sont des fibres plastiques Hewlett Packard de 1 mm de diamètre (HFBR 3507), couplées avec des émetteurs-récepteurs à diode électro-luminescente (HFBR 1501 et HFBR 2501).

Le schéma simplifié du système de déclenchement est présenté figure (23) ainsi que la forme et les délais entre les signaux (figure 24). Ce montage permet de superposer les impulsions laser au niveau du jet avec la précision attendue soit environ 2 ns. La stabilité de la superposition est bonne puisqu'il n'y a pas de dérive appréciable en une demi-journée de fonctionnement sans interruption.

CHAPITRE III

GENERATION D'ULTRA-VIOLET LOINTAIN A LA LONGUEUR D'ONDE
DE LA RAIE LYMAN α DE L'HYDROGENE

III. GENERATION D'ULTRA-VIOLET LOINTAIN A LA LONGUEUR D'ONDE DE LA RAIE LYMAN α DE L'HYDROGENE

Les lasers à colorant sont des sources lumineuses pouvant fournir un rayonnement cohérent accordable jusqu'à des longueurs d'ondes ultra-violettes voisines de 310 nm (en impulsions). Pour obtenir un rayonnement accordable de longueur d'onde plus courte, il est nécessaire d'avoir recours aux interactions non linéaires dans des milieux adaptés.

Les impulsions lumineuses délivrées par les lasers à colorant peuvent être tellement intenses qu'il est possible d'utiliser des processus non-linéaires d'ordre 2, 3 et même au-delà pour créer un rayonnement accordable dans l'ultra-violet lointain (U.V.L.) et jusqu'à la limite des rayons X mous [48 à 52].

La partie la plus utilisée du spectre U.V.L. est limitée d'une part par la transmission des matériaux (MgF_2 , LiF) à 110 nm et d'autre part par la transmission de l'air à 200 nm. Dans cette zone, les processus non linéaires conduisant à la production d'U.V.L. sont essentiellement : le mélange de fréquences à quatre ondes et le déplacement de fréquence par effet Raman anti-stokes. Ce dernier processus

est limité, vers les longueurs d'ondes courtes, à environ 190 nm pour un système accordable. Avec le mélange de fréquence à quatre ondes on est en mesure de couvrir presque entièrement le spectre entre 110 et 210 nm [22]. Aux puissances habituelles des lasers fonctionnant en impulsions, le rendement de conversion est malheureusement très faible et limité à 10^{-5} - 10^{-6} lorsque le processus est non résonnant ; il peut atteindre 10^{-2} si on profite d'un processus résonnant à deux photons. Bien entendu ceci n'est possible qu'au voisinage de quelques valeurs discrètes de longueur d'onde [20,21,53,54].

Dans le cas précis qui nous intéresse, il n'existe pas de processus résonnant qui nous autorise à espérer un rendement meilleur que 10^{-5} avec un mélange à quatre ondes dans un gaz. Les seuls gaz (ou vapeurs métalliques) susceptibles de produire un rayonnement U.V.L. à la longueur d'onde de Lyman α sont le krypton en triplage de fréquence ; le magnésium, le mercure et le krypton en mélange de fréquences. Nous avons exposé au chapitre I les raisons pour lesquelles nous avons opté pour le triplage de fréquence. Nous nous bornerons donc dans la suite à envisager la génération d'U.V.L. à $\lambda = 121,6$ nm par triplage de fréquence dans du krypton (ou un mélange Kr-Ar).

III.1. RAPPELS SUR LA THEORIE DES PROCESSUS NON-LINEAIRES DU TROISIEME ORDRE DANS LES MILIEUX ISOTROPES [55 à 57]

D'une façon générale, on peut donner une description phénoménologique des effets non-linéaires, dans le cadre de l'approximation dipolaire électrique, en exprimant la polarisation induite dans un milieu par un développement du type :

$$\underline{P} = \epsilon_0 \underline{\chi}^{(1)} \vec{E}_1 + \epsilon_0 \underline{\chi}^{(2)} \vec{E}_1 \vec{E}_2 + \epsilon_0 \underline{\chi}^{(3)} \vec{E}_1 \vec{E}_2 \vec{E}_3 + \dots^* \quad (\text{III.1})$$

où $\vec{E}_1, \vec{E}_2, \vec{E}_3 \dots$ sont les champs électriques de fréquences ν_1, ν_2 et ν_3 appliqués au milieu et les $\chi^{(n)}$ les tenseurs de susceptibilité non-linéaire, de rang $(n+1)$, caractéristiques du milieu. Le premier terme décrit les propriétés optiques linéaires liées à l'indice de réfraction. Les non-linéarités optiques ne se manifestant qu'en champ fort, les termes suivants n'apparaissent qu'avec des flux lumineux intenses. Ainsi, l'existence du second terme fut confirmée par l'expérience de Franken dans laquelle un rayonnement au deuxième harmonique d'un laser à rubis fut produit en focalisant le faisceau laser sur un cristal de quartz [58]. Sensiblement au même moment, Kaiser et Garrett observèrent un effet optique non-linéaire au troisième ordre [59]. Depuis, les processus non-linéaires du 3^{ème} ordre ont été largement déve-

* Le fait de mettre ϵ_0 dans la formule (III.1) est habituel en unités SI lorsque l'on considère la polarisation linéaire $P = \epsilon_0 \chi E$. Si on retient cette notation pour les termes non-linéaires, l'unité de $\chi^{(n)}$ est alors $(V.m^{-1})^{1-n}$.

loppés expérimentalement surtout à partir du début des années 70, lorsque les lasers pulsés de puissance ont commencé à être répandus commercialement.

III.1.1. Expression de la susceptibilité non-linéaire

Dans un milieu ne possédant pas de centre de symétrie, seuls subsistent les éléments pairs du développement (III.1). Dans un milieu isotrope, les éléments pairs disparaissent au bénéfice des éléments impairs. Les effets non-linéaires au troisième ordre apparaissent donc dans tous les gaz, vapeurs métalliques, etc..

On peut s'affranchir de la notation tensorielle explicite de $\chi^{(n)}$ qui donnerait une forme compliquée à la relation (III.1). En posant $\vec{E}_{vi} = \vec{e}_i E_i$ où \vec{e}_i est le vecteur unité de polarisation, on définit scalairement la susceptibilité non linéaire :

$$\begin{aligned} & \chi^{(n)}(-\nu_\sigma; \nu_1 \dots \nu_n) \\ &= \sum_{\mu \alpha_1 \dots \alpha_n} \chi_{\mu \alpha_1 \dots \alpha_n}^{(n)}(-\nu_\sigma; \nu_1 \dots \nu_n) (\epsilon_\sigma^*)_\mu (\epsilon_1)_{\alpha_1} \dots (\epsilon_n)_{\alpha_n} \end{aligned}$$

où μ et $\alpha_1 \dots \alpha_n$ désignent les composantes cartésiennes (x, y ou z).

Alors, la polarisation induite dans le milieu à l'ordre n par une série d'ondes planes monochromatiques peut se mettre sous la forme scalaire suivante :

$$P_{\sigma}^{(n)} = \epsilon_0 K(-v_{\sigma}; v_1 \dots v_n) \chi^{(n)}(-v_{\sigma}; v_1 \dots v_n) E_1 \dots E_n \quad (\text{III.2})$$

$K(-v_{\sigma}; v_1 \dots v_n)$ est un facteur numérique qui tient compte des symétries de permutation existant dans la sommation suivant les α_n .

Les susceptibilités non-linéaires peuvent être calculées théoriquement pour un atome (ou une molécule) donné avec, par exemple, le formalisme de la matrice densité.

La susceptibilité à l'ordre (n) et à la fréquence v_{σ} qui en est déduite est donnée par la formule générale :

$$\chi^{(n)}(-v_{\sigma}; v_1 \dots v_n) = \frac{N}{n! \hbar^n \epsilon_0} S_T \sum_{g b_1 \dots b_n} \rho(g) \frac{\epsilon_{\sigma}^* Q_{g b_1} \epsilon_1 Q_{b_1 b_2} \dots \epsilon_n Q_{b_n g}}{(\Omega_{b_1 g} - v_1 \dots - v_n) (\Omega_{b_2 g} - v_2 \dots - v_n) (\Omega_{b_n g} - v_n)} \quad (\text{III.3})$$

où N est la densité d'atomes.

Les fréquences de transition Ω_{ij} sont définies en termes d'énergie de transitions atomiques E_i, E_j par $\Omega_{ij} = (E_i - E_j)$. Les Q_{ij} sont les éléments de matrice entre les états stationnaires $|i\rangle, |j\rangle$ de l'atome non perturbé : $\langle i | e_r | j \rangle$. $\rho(g)$ est l'élément diagonal de la matrice densité pour l'état initial g non perturbé.

L'opérateur de symétrisation totale S_T indique que l'expression qui le suit doit être sommée sur toutes les permutations des paires $\underline{\epsilon}_p^*, -v_{\sigma} ; \underline{\epsilon}_1, v_1 \dots \underline{\epsilon}_n, v_n$. Il y a par conséquent $(n+1)!$ termes issus de la sommation dans (III.3).

Cette expression, pour le moins compliquée, permet cependant de remarquer qu'on peut profiter de transitions

atomiques pour augmenter considérablement la valeur de $\chi^{(n)}$: au voisinage d'une transition atomique, un terme de la forme $(\Omega_{b_i g_i} - \nu_i \dots - \nu_n)$ qui apparaît au dénominateur de la relation (III.3), s'annule. Cette remarque n'est vraie en réalité que pour des transitions n'introduisant pas de fortes absorptions, c'est-à-dire pour les transitions à deux photons.

III.1.2. Etude des effets de focalisation sur le processus de génération de troisième harmonique dans les milieux isotropes

Pour plus de simplicité nous nous limiterons ici au cas du triplage de fréquence, c'est-à-dire au cas où les trois fréquences à sommer sont dégénérées :

$$\nu + \nu + \nu \longrightarrow 3\nu$$

Une étude particulièrement approfondie des processus du troisième ordre a été réalisée d'abord par Ward et New puis par G.C. Bjorklund. Les résultats de ces études ont permis de déterminer de façon tout-à-fait satisfaisante les conditions expérimentales d'obtention d'U.V.L. par mélange à quatre ondes [60 à 62]. Deux points importants peuvent être notés tout de suite.

- . La puissance engendrée à la fréquence 3ν est proportionnelle au cube de la puissance incidente à la fréquence ν .
- . Les vecteurs d'onde \vec{k}' de la polarisation induite et \vec{k} du rayonnement incident sont reliés par la relation : $\vec{k}' = 3\vec{k}$.

Pour arriver aux grandes densités de puissance nécessaires pour le triplage de fréquence il faut focaliser fortement le faisceau fondamental. Afin de ne pas détériorer les optiques de la cellule contenant le milieu non-linéaire, il faut donner à la cellule une longueur beaucoup plus grande que celle de la zone focale. Au niveau du foyer, il se produit un changement de phase de π radians qui affecte de façon différente le vecteur d'onde de la polarisation induite et celui du rayonnement engendré. Des interférences destructrices peuvent se développer entre des ondes créées à différents endroits de la cellule à moins que le glissement de phase ne soit compensé par un désaccord approprié des vecteurs d'onde.

A) Définition de la condition théorique d'accord de phase

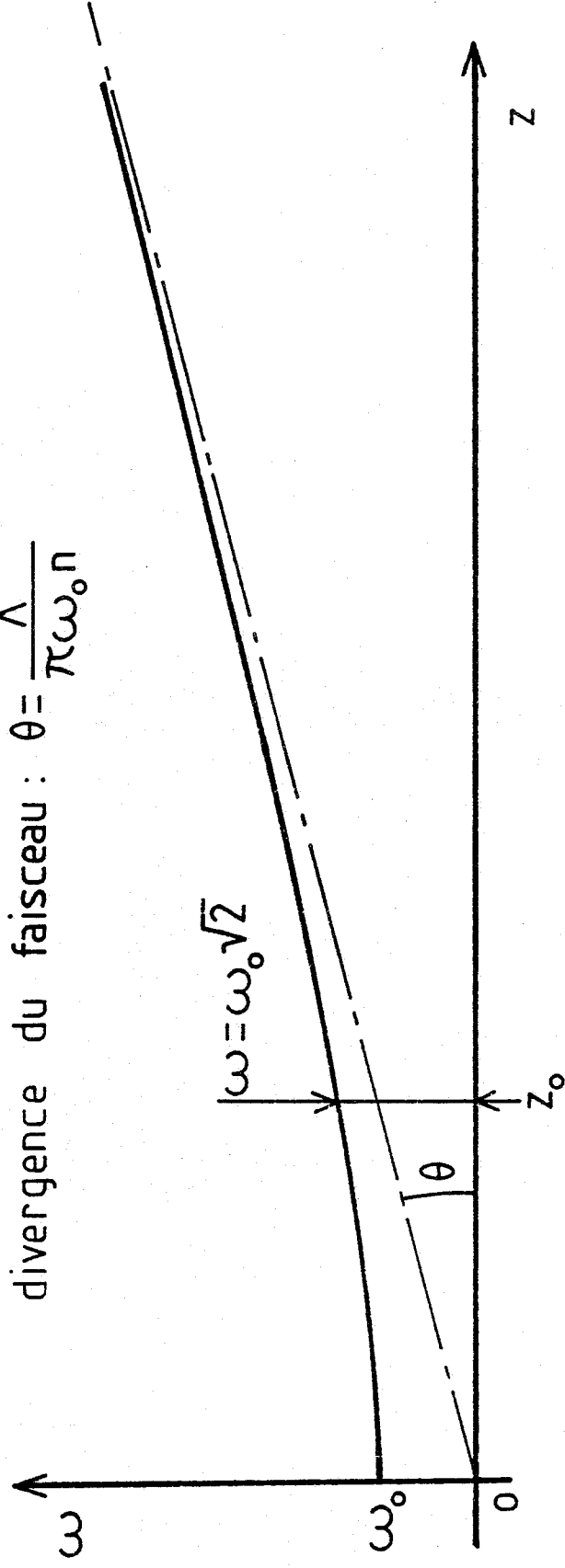
La marche à suivre consiste à définir le rayonnement engendré au troisième harmonique tant du point de vue de la puissance que du point de vue de la forme.

D'une façon générale, l'approche théorique [62] consiste à spécifier la variation spatiale de la polarisation induite, d'en effectuer une décomposition de Fourier en ondes planes, à calculer le champ rayonné par chacune de ces composantes et ensuite d'en déduire le champ total créé en sommant les contributions de toutes ces composantes.

On suppose que le faisceau fondamental à la fréquence ν possède un mode Gaussien d'ordre le plus bas (TEM_{00}) qui se propage le long d'un axe z .

paramètre confocal $b = 2z_0$

divergence du faisceau : $\theta = \frac{\lambda}{\pi \omega_0 n}$



caractéristiques d'un faisceau gaussien

Si le vecteur d'onde de ce faisceau dans le milieu non linéaire est k et l'amplitude du champ électrique E_0 , alors le champ électrique fondamental est donné par :

$$E(r,t) = \text{Re}[E(r)e^{-i\nu t}] \quad (\text{III.4})$$

$E(r)$ peut s'exprimer, pour un mode TEM_{00} , suivant le modèle introduit dans la théorie Boyd et Gordon par : [110]

$$E(r) = E_0 \frac{e^{ikz}}{(1+i\mathcal{E})} \times e^{-\frac{k(x^2+y^2)}{b(1+i\mathcal{E})}} \quad (\text{III.5})$$

b étant le paramètre confocal : $b = \frac{2\pi\omega_0^2}{\lambda} = \frac{2\pi\omega_0^2 n}{\lambda_0} = k\omega_0^2$ où ω_0 est le rayon à la taille du faisceau (waist), n l'indice de réfraction et λ_0 la longueur d'onde dans le vide. \mathcal{E} est une coordonnée normalisée le long de l'axe z , définie par :

$$\mathcal{E} = \frac{2(z-f)}{b}$$

f étant la position du foyer le long de l'axe z .

Le faisceau fondamental est supposé polarisé linéairement et le faisceau engendré polarisé linéairement dans la même direction. Dans ces conditions, on peut négliger la nature vectorielle du champ électrique aussi bien que la nature tensorielle de la susceptibilité non linéaire.

La polarisation induite à 3ν est donnée par :

$$P_{3\nu}(r,t) = \text{Re}[P_{3\nu}(r)e^{-2\pi i(3\nu t)}] \quad (\text{III.6})$$

où

$$P_{3\nu}(r) = \frac{1}{4} N\chi(-3\nu; \nu, \nu, \nu) E^3(r) \quad (\text{III.7})$$

Le facteur numérique $\frac{1}{4}$ correspond au $K(-3\nu; \nu, \nu, \nu)$ de la relation (III.2).

χ est la susceptibilité non linéaire par atome et N la densité d'atomes dans le milieu non-linéaire.

Dans la suite de ce chapitre nous utiliserons la notation simplifiée $\chi^{(3)}$ à la place de $\chi(-3\nu; \nu, \nu, \nu)$. ϵ_0 disparaît de l'expression de $P_{3\nu}$ si nous passons aux unités ESU employées plus généralement. Le milieu non-linéaire est supposé occuper le semi-espace $z > 0$. L'autre semi-espace $z < 0$ est supposé vide.

D'après (III.5) et (III.7) :

$$P_{3\nu}(\mathbf{r}) = \frac{1}{4} N \chi^{(3)} E_0^3 \frac{e^{ik'z}}{(1+iE)^3} e^{\left[\frac{-k'(x^2+y^2)}{b(1+iE)} \right] B(z)} \quad (\text{III.8})$$

où k' est le vecteur d'onde de la polarisation induite :

$$k' = k + k + k = 3k$$

$$\text{et où } B(z) = \begin{cases} 1, & z > 0 \\ 0 & z < 0 \end{cases}$$

L'étape suivante consiste à faire une décomposition de Fourier de $P_{3\nu}(\mathbf{r})$ pour déterminer les amplitudes des ondes planes composant la polarisation induite, et en se servant des équations de Maxwell, d'en déduire le champ total engendré à la fréquence 3ν . Le résultat de cette opération nous donne pour $E_{3\nu}(\mathbf{r})$:

$$E_{3\nu}(\mathbf{r}) = i \frac{N}{4k_1} \pi k_0^2 \chi^{(3)} E_0^3 \frac{e^{ik'z}}{(1+iE)^3} e^{\left[\frac{-k'(x^2+y^2)}{b(1+iE)} \right]} \times \int_{-\xi}^E \frac{e^{[-(ib/2)\Delta k(E'-E)]}}{(1+iE')^2} dE' \quad (\text{III.9})$$

où k_1 et k_0 sont les vecteurs d'onde du rayonnement engendré dans le milieu non linéaire et le vide respectivement.

Le désaccord Δk des vecteurs d'onde est défini par la relation :

$$\Delta k = k_1 - k' = k_1 - 3k \quad (\text{III.10})$$

qui représente donc la différence entre le vecteur d'onde du rayonnement engendré et le vecteur d'onde de la polarisation. Il est important de remarquer, en considérant la formule (III.9), que $E_{3\nu}(r)$ est toujours un **mode gaussien TEM₀₀** avec le même paramètre confocal et la même position de la taille du faisceau que le faisceau fondamental.

En conséquence, la taille du faisceau à 3ν et sa divergence sont plus petits d'un facteur $\frac{1}{\sqrt{3}}$ que pour le faisceau fondamental.

La puissance engendrée à la fréquence 3ν est obtenue à l'aide d'une intégrale de la forme :

$$\int_0^{+\infty} 2\pi R \left| E_{3\nu}(R) \right|^2 dR$$

avec $R = (x^2 + y^2)^{1/2}$ puisqu'il y a symétrie circulaire de $E_{3\nu}(r)$ autour de l'axe z .

On obtient alors :

$$P_{3\nu} = (1,755 \cdot 10^{-5}) \frac{k_0^4 k^3}{k_1^2 k'} N^2 [\chi^{(3)}]^2 P_\nu^3 (b\Delta k). \quad (\text{III.11})$$

où les vecteurs d'onde sont exprimés en cm^{-1} , b en centimètres, N en atomes par cm^3 , $\chi^{(3)}$ en $\text{cm}^3 \text{erg}^{-1}$ (ESU) par atome, P_ν et $P_{3\nu}$ en watts.

La fonction $F(b\Delta k)$ est une fonction sans dimension qui dépend explicitement du paramètre $b\Delta k$ et qui vaut (si b est très petit devant les dimensions de la cellule et si la zone focale est entièrement contenue dans la cellule) :

$$F(b\Delta k) = \begin{cases} (\pi b\Delta k)^2 e^{b\Delta k} & \text{pour } \Delta k < 0 \\ 0 & \text{pour } \Delta k \geq 0 \end{cases} \quad (\text{III.12})$$

La fonction $F(b\Delta k)$ est maximale pour $b\Delta k = -2$. Ce résultat peut être prévu de façon approximative en examinant le modèle simple suivant :

Dans la relation (III.5), si nous considérons la variation de phase le long de l'axe du faisceau ($x=y=0$), nous voyons que, en plus du terme e^{ikz} , il y a la contribution du facteur $(1+iE)^{-1}$. Celui-ci peut s'écrire aussi :

$$(1+iE)^{-1} = (1+E^2)^{-1/2} e^{-i\text{Arctg}E}$$

Quand le faisceau traverse la zone focale, il subit un changement de phase de $\text{Arctg}E'$. La polarisation quant à elle, étant proportionnelle à $E^3(r)$, subit un changement de phase de $3\text{Arctg}E'$.

Si on admet que le maximum de puissance engendrée est obtenu lorsque le rayonnement à la fréquence 3ν possède un mode TEM_{00} de même paramètre confocal que le faisceau fondamental, alors le faisceau harmonique effectue un changement de phase de $\text{Arctg}E'$. Par conséquent, l'écart de phase entre la polarisation induite et le rayonnement engendré est de $2\text{Arctg}E'$.

Cet écart de phase peut être compensé par le désaccord des vecteurs d'onde Δk introduit par la dispersion du milieu.

En prenant arbitrairement une zone de production d'UVL comprise entre $-b$ et $+b$ de part et d'autre du point de focalisation, alors E varie de -2 à $+2$ et donc l'adaptation de phase est réalisée si :

$$2b(\Delta k) = 2[\text{Arctg}(-2) - \text{Arctg}(+2)]$$

soit $b\Delta k = -2,2$ en bon accord avec la valeur théorique.

On note donc que la région où est créée l'U.V.L. est très restreinte (de l'ordre de grandeur de b), il s'ensuit que la position du point de focalisation n'est pas critique pourvu que la zone où est effectué le triplage de fréquence soit entièrement contenue dans la cellule.

B) Définition des conditions expérimentales d'accord de phase

Si on néglige les effets parasites tels que : claquage dû à une trop forte focalisation, absorption, effet Kerr quadratique, etc.. la puissance totale engendrée à 3ν est donnée par (III.11) et donc obéit à la relation de proportionnalité :

$$P_{3\nu} \sim P_V^3 N^2 [\chi^{(3)}]^2 F(b\Delta k) . \quad (\text{III.13})$$

Si on considère comme constants les paramètres P_V et χ , la procédure d'optimisation consiste à rendre maximum la quantité $N^2 F(b\Delta k)$.

En supposant que N soit un paramètre indépendant de $b\Delta k$, cela revient à accroître N jusqu'à la valeur la plus grande possible en rendant F maximum indépendamment, donc à réaliser la condition :

$$b\Delta k = -2$$

La valeur de b est généralement choisie une fois pour toute de façon à se situer à la valeur de P_v maximum tout en ne créant pas de claquage dans le milieu non linéaire.

En fait, pour un milieu non-linéaire donné Δk dépend de N et la relation $b\Delta k = -2$ n'est réalisée que pour une valeur déterminée de N .

Pour rendre Δk indépendant de N , on peut mélanger avec le milieu non-linéaire un autre milieu dont la non-linéarité peut être négligeable mais dont la dispersion est importante. Δk peut alors être contrôlé en faisant varier la concentration de cet autre milieu.

En pratique on utilise un milieu de dispersion négative et on augmente N jusqu'à avoir $b\Delta k < -2$, puis on ajoute un milieu de dispersion positive de façon à optimiser $b\Delta k$.

III.1.3. Prévisions pour réaliser les conditions expérimentales d'obtention d'U.V.L. à Lyman α dans le krypton pur et le mélange krypton-argon

Ayant caractérisé les conditions physiques d'obtention d'U.V.L. par triplage de fréquence, il faut maintenant

déterminer quels sont les milieux non linéaires qui possèdent la dispersion négative indispensable pour être utilisés de façon efficace. Pour cela, il faut avoir des données expérimentales sur les forces d'oscillateur des transitions et sur les sections efficaces de photoionisation. Ces données, qui existent pour les gaz rares, ont été exploitées par l'équipe R. Mahon et al. [63] qui a calculé les indices de réfraction pour Ar, Kr et Xe au voisinage de la longueur d'onde de Lyman α . Le seul gaz rare qui présente une dispersion négative pour cette longueur d'onde est le krypton. Par ailleurs, pour les gaz rares, la limite d'ionisation est située à une longueur d'onde beaucoup plus courte que 122 nm, il n'y a donc pas d'absorption par photoionisation.

Le désaccord Δk entre les vecteurs d'ondes peut être défini par rapport à la densité d'atomes N contenus dans le milieu par :

$$\Delta k = CN = \frac{2\pi(n_1 - n)}{\lambda_1} \quad * \quad (\text{III.14})$$

où C est le désaccord des vecteurs d'onde par atome, par cm^3

n_1 est l'indice de réfraction à la longueur d'onde du rayonnement engendré λ_1

n est l'indice de réfraction à la longueur d'onde du rayonnement fondamental $3\lambda_1$

* L'indice de réfraction à la longueur d'onde λ est donné par la formule de Sellmeier :

$$(n-1) = \frac{Nr_e}{2\pi} \sum_i \frac{f_i}{\lambda_i^2 - \lambda^2} \quad \text{où } r_e = 2,818 \cdot 10^{-13} \text{ cm est le rayon classique de l'électron, } f_i$$

la force d'oscillateur de la $i^{\text{ème}}$ transition, et λ_i la longueur d'onde de la $i^{\text{ème}}$ transition. On voit donc que Δk qui fait intervenir une différence de deux indices est proportionnel à N .

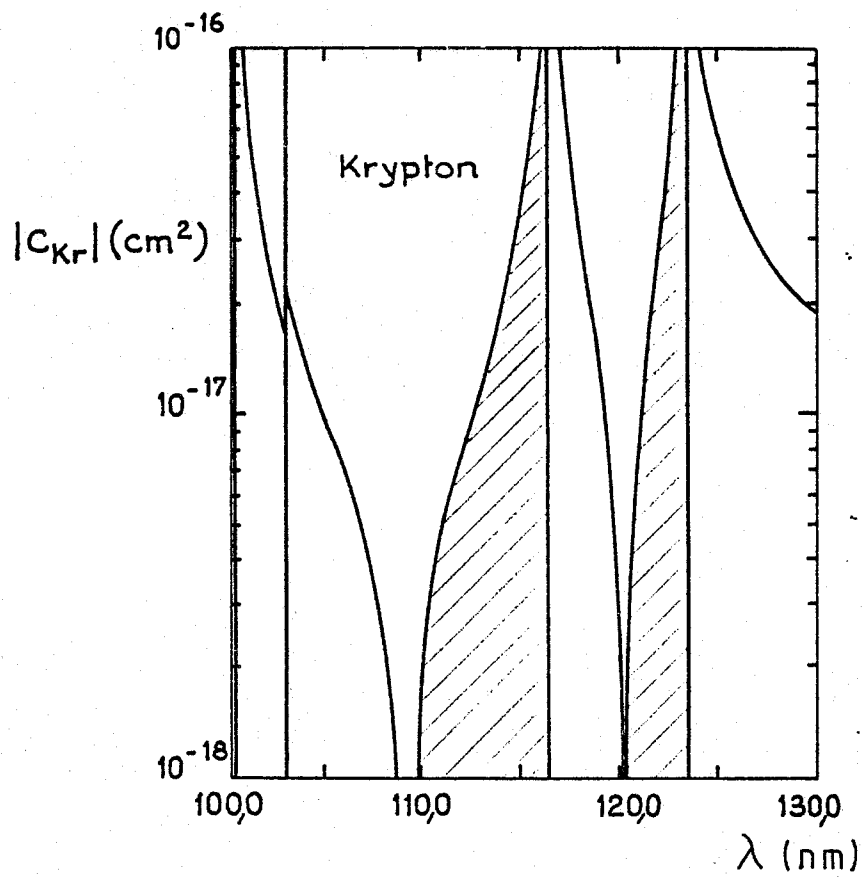
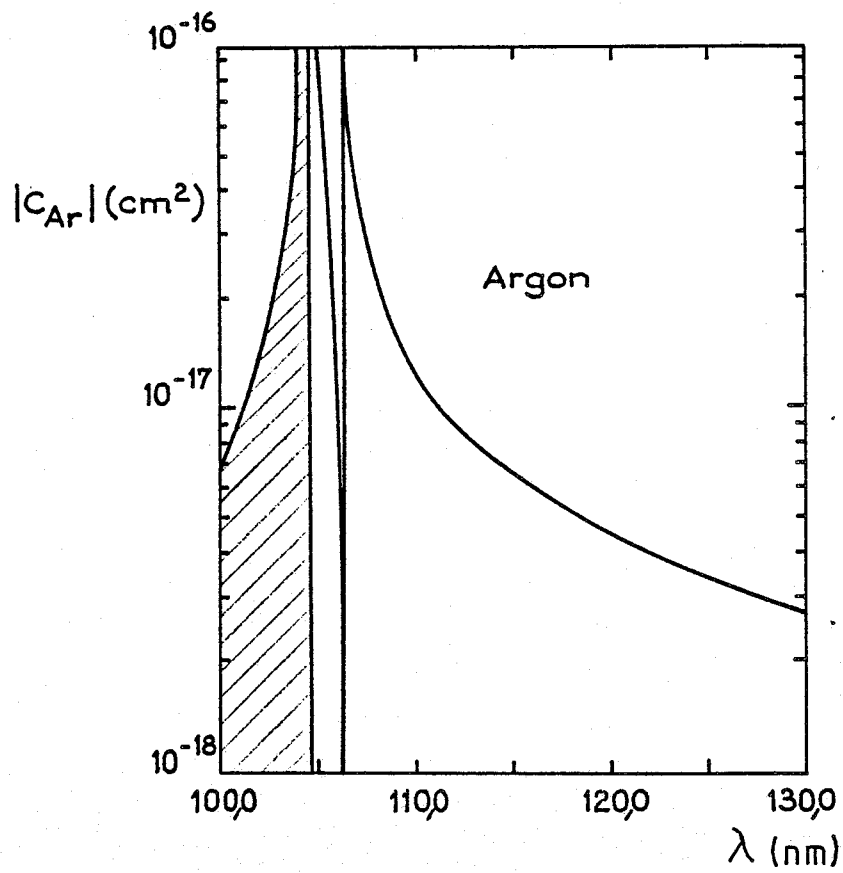


FIGURE 25 (référence [63])

La figure 25 représente $|C|$ en fonction de la longueur d'onde λ_1 du rayonnement engendré, pour Ar et Kr. Les parties hachurées correspondent aux valeurs négatives de C et donc délimitent les régions spectrales où la dispersion négative autorise le triplage de fréquence. Les régions non hachurées correspondent aux longueurs d'ondes pour lesquelles le gaz a une dispersion positive et peut donc être utilisé pour réaliser la condition $b\Delta k = -2$ avec un gaz de dispersion négative.

Pour $\lambda_1 = 121,6$ nm, on a ainsi la possibilité d'utiliser du krypton pur ou un mélange krypton-argon. A cette même longueur d'onde la référence [63] fournit les valeurs suivantes pour $\chi^{(3)}$ et C

$$\begin{aligned} C_{Kr} &= -1,217 \cdot 10^{-17} \text{ cm}^2 & \chi_{Kr}^{(3)} &= 1,1 \cdot 10^{-36} \text{ ESU} \\ C_{Ar} &= 4,304 \cdot 10^{-18} \text{ cm}^2 & \chi_{Ar}^{(3)} &\text{ négligeable} \end{aligned}$$

on a :

$$\Delta k = N_{Kr} C_{Kr} + N_{Ar} C_{Ar} \quad (\text{III.15})$$

Cette relation permet d'évaluer la puissance d'U.V.L. qu'il sera possible d'atteindre, ainsi que la forme de la courbe $P_{3\nu} = f(N_{Kr})$.

En supposant $\Delta k \ll k, k_1, k_0$, la relation (III.11) s'écrit :

$$P_{3\nu} = \frac{8,215 \cdot 10^{-2}}{(3\lambda_1)^4} [\chi^{(3)}]^2 N_{Kr}^2 P_{\nu}^3 (\pi b \Delta k)^2 e^{b\Delta k} \quad (\text{III.16a})$$

en utilisant pour Δk la relation (III.15).

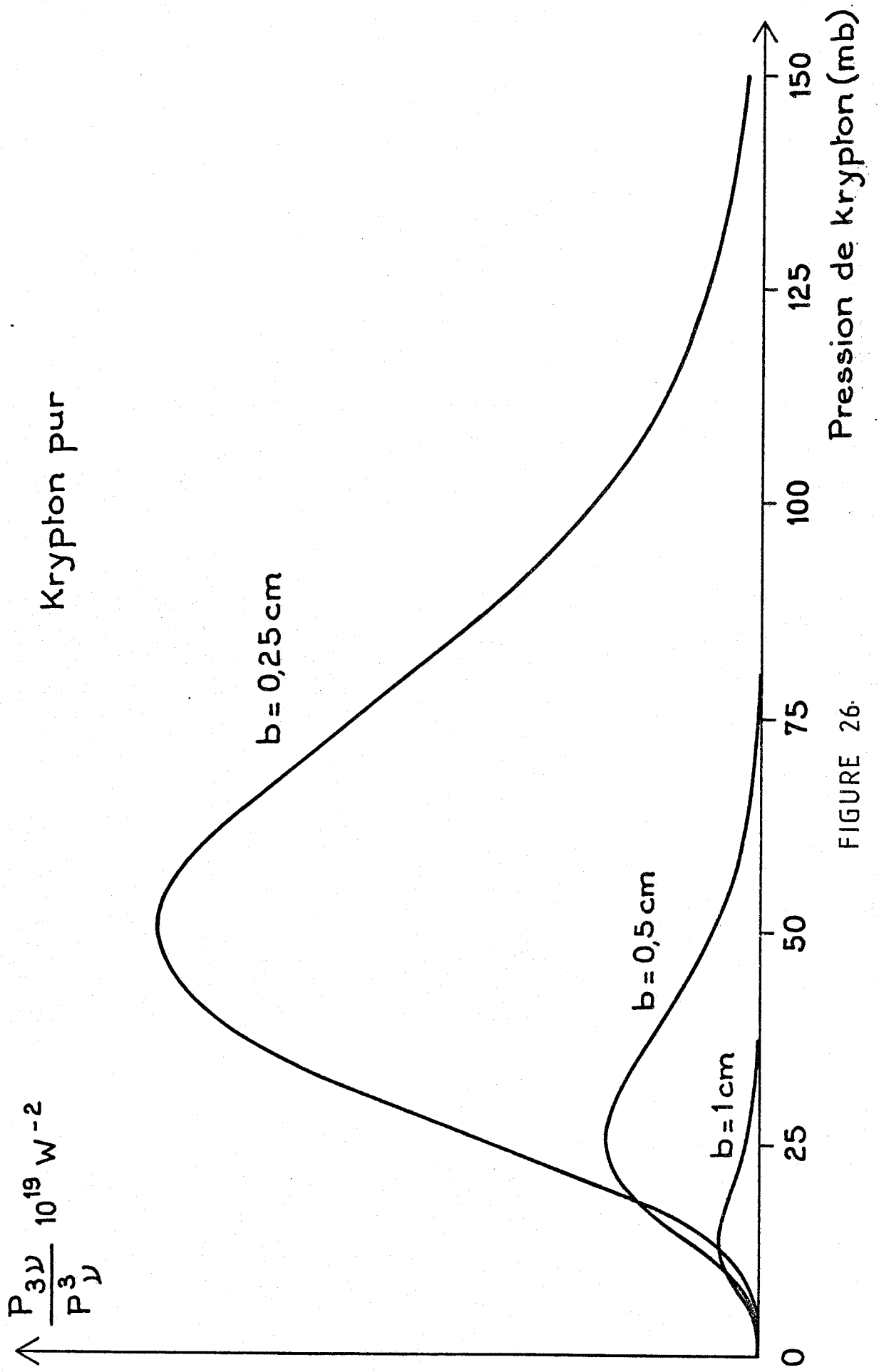
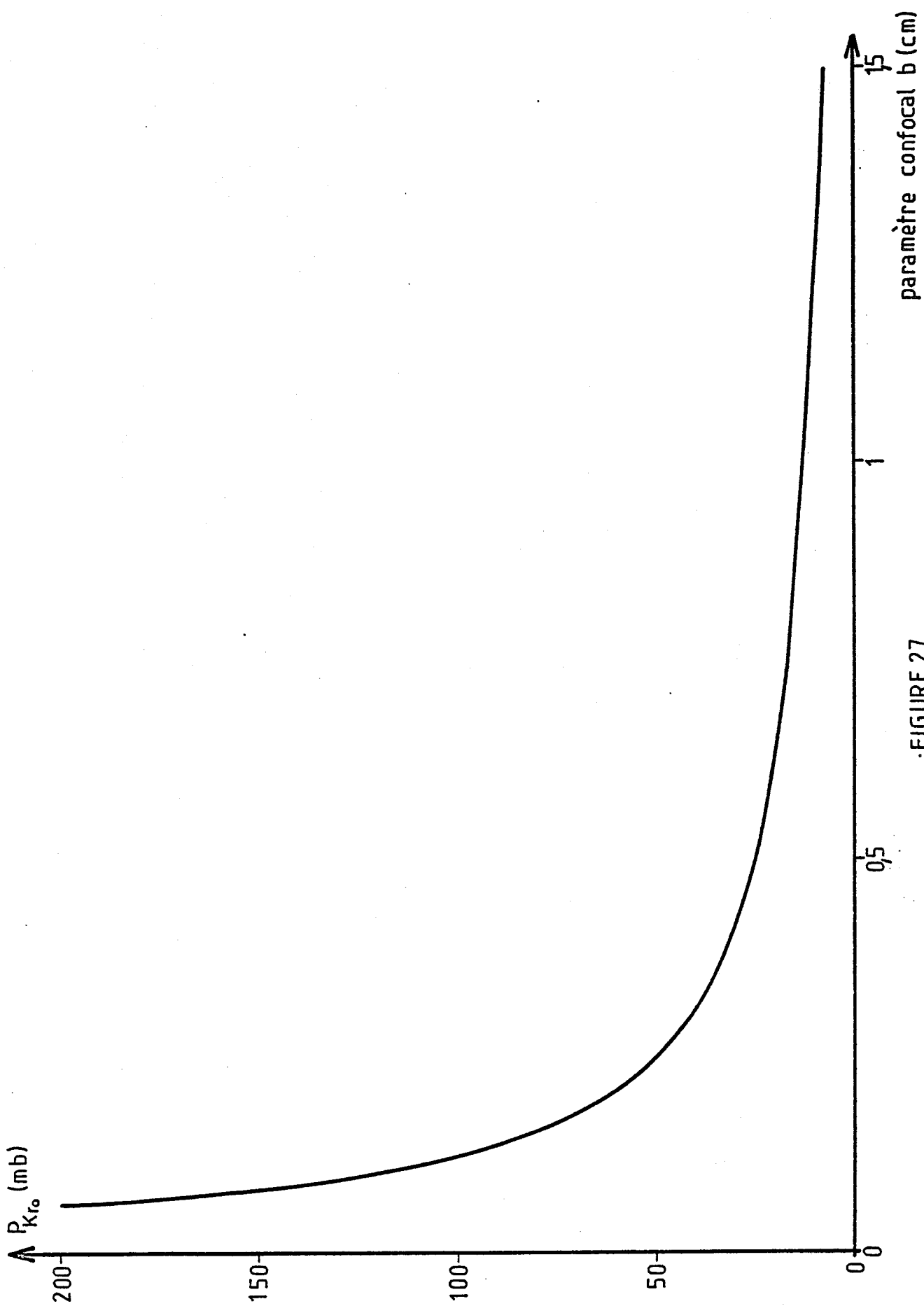


FIGURE 26.



· FIGURE 27

A) Cas du krypton pur

On peut, en outre, exprimer le rapport P_{3V}/P_V^3 directement en fonction de la pression de krypton P_{Kr} en prenant b comme paramètre. On a alors :

$$\frac{P_{3V}}{P_V^3} = 4,07 \cdot 10^{-23} P_{Kr}^4 b^2 e^{-0,323bP_{Kr}} \quad (\text{III.16b})$$

On a posé $N_{Kr} = CP_{Kr}$ avec P_{Kr} en millibars.

Le facteur de conversion C valant : $C = 2,6539 \cdot 10^{16} \text{ at.cm}^{-3} \cdot \text{mb}^{-1}$. Les courbes (26) représentent cette fonction pour différentes valeurs de b ; si on diminue b , la puissance engendrée s'accroît en même temps que la pression nécessaire pour réaliser l'accord de phase.

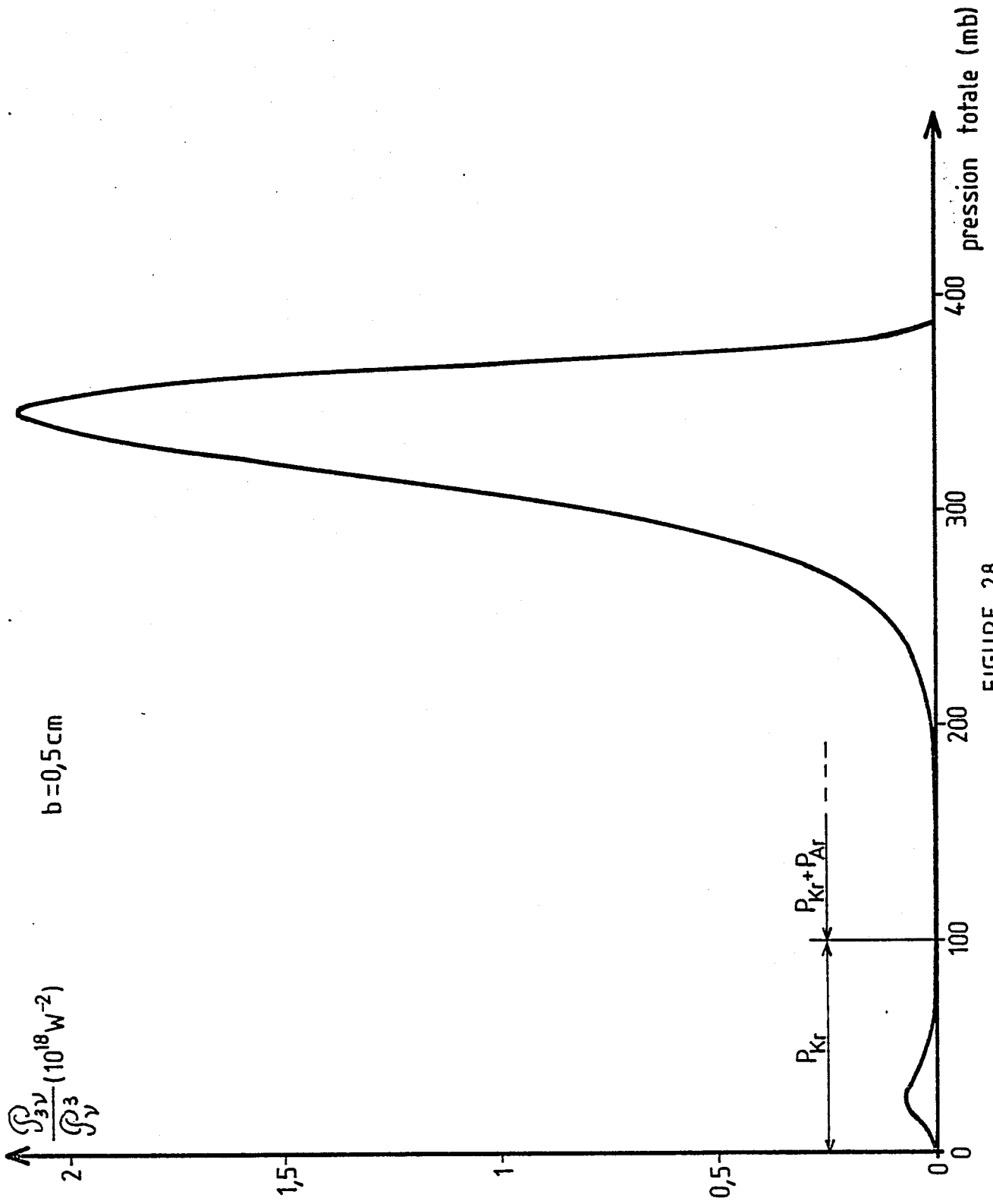
Il est donc intéressant de pouvoir exprimer la valeur optimale de la pression en fonction du paramètre confocal b . Il suffit pour cela de trouver la valeur maximale de la fonction P_3/P_V^3 , qui est donnée par la relation simple : (figure 27) :

$$P_{Kr} \cdot b = 12,384 \text{ mb.cm} \quad (\text{III.17})$$

B) Cas du mélange krypton-argon

Dans la pratique, il est plus aisé de garder le paramètre confocal du faisceau fondamental fixe (lentille de focalisation unique) et d'augmenter la pression de krypton en utilisant un mélange de gaz pour accroître la puissance P_{3V} .

Pour ce cas précis, la relation (III.16) s'écrit :



$b = 0,5 \text{ cm}$

FIGURE 28

$$\frac{P_{3V}}{P_V^3} = 3,901 \cdot 10^{-22} P_{Kr}^2 (b\Delta k)^2 e^{b\Delta k} \quad (\text{III.16c})$$

avec $\Delta k = 0,11422 P_{Ar} - 0,3230 P_{Kr}$.

La courbe représentée figure (28) donne une idée de ce que l'on doit observer si on fait un accord de phase avec le mélange krypton-argon. Le gain en puissance est ici de 30 pour un accroissement de la pression du krypton de seulement 6.

Ce gain en puissance relatif à l'augmentation de la pression de krypton peut être évalué en calculant les maximums des relations (III.16b) et (III.16c) à paramètre confocal b fixé.

La relation (III.16b) concernant le krypton pur est maximum lorsque $b\Delta k = -4$ (et non -2 puisqu'ici c'est la pression de krypton qui est considérée comme une variable).

Ce qui donne à (III.16b) la valeur :

$$\left(\frac{P_{3V}}{P_V^3}\right)_{Kr \max} = 3,901 \cdot 10^{-22} P_{Kr_0}^2 (16e^{-4}). \quad (\text{III.18})$$

à b fixé, la fonction $F(b\Delta k)$ peut alors être optimisée en effectuant le mélange krypton-argon jusqu'à obtenir $b\Delta k = -2$, soit :

$$\left(\frac{P_{3V}}{P_V^3}\right)_{Kr+Ar \max} = 3,901 \cdot 10^{-22} P_{Kr}^2 (4e^{-2}) \quad (\text{III.19})$$

En faisant le rapport des relations (III.19) et (III.18), on en déduit le gain G : (figure 29)

$$G = \left(\frac{P_{3V}}{P_V^3}\right)_{Kr+Ar \max} / \left(\frac{P_{3V}}{P_V^3}\right)_{Kr \max} = \frac{e^2 P_{Kr}^2}{4P_{Kr_0}^2} \quad (\text{III.20})$$

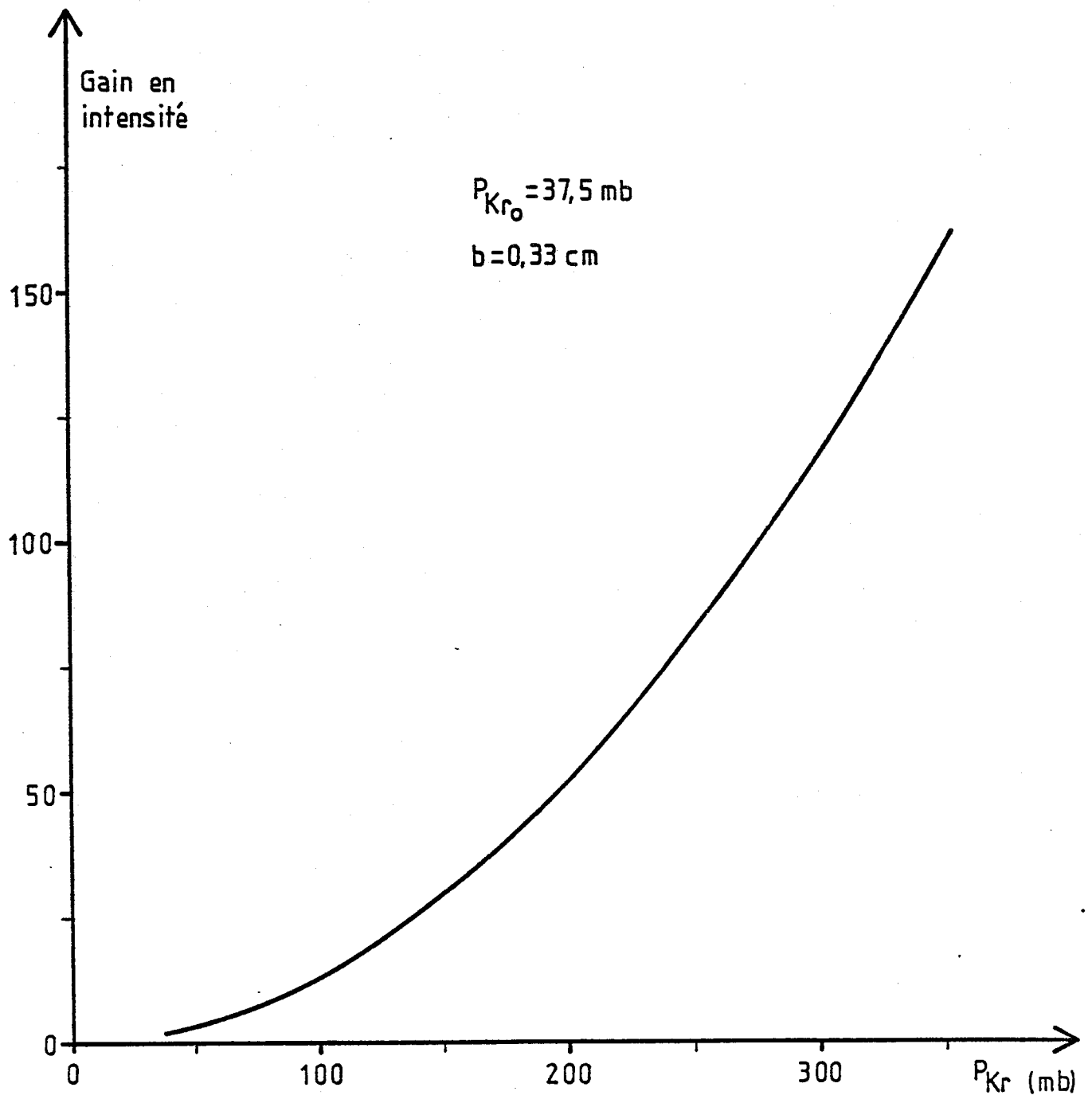


FIGURE 29

On note que G ne dépend pas explicitement du paramètre confocal, ce qui est normal puisque b n'intervient que dans le facteur $b\Delta k$ qui est supposé optimisé. Cependant il intervient par l'intermédiaire du paramètre P_{Kr_0} , et donc plus b est grand (donc P_{Kr_0} petit) plus le gain est important.

On remarque par ailleurs que si $P_{Kr} = P_{Kr_0}$, G vaut $e^2/4 \approx 1,85$ et non 1 comme on aurait pu s'y attendre. En fait cela veut dire que même à la pression P_{Kr_0} , optimisée pour l'accord de phase en krypton pur il est possible d'obtenir un meilleur rendement en rajoutant de l'argon. Le gain unité, si on réalise un accord de phase avec un mélange krypton-argon est obtenu pour une pression de krypton :

$$P_{Kr} = \frac{2}{e} P_{Kr_0} < P_{Kr_0}$$

Il est commode également de pouvoir connaître la pression totale $P_{Kr} + P_{Ar}$ en fonction de la pression du krypton introduit dans la cellule de triplage. En effet, dans la pratique, on commence par mettre une certaine pression de krypton et on ajuste l'accord de phase en ajoutant l'argon, on note alors la pression totale.

A partir des relations (III.12) et (III.15) on arrive à la formule suivante valable pour la longueur d'onde de Lyman α

$$P_{Ar} + P_{Kr} = 3,828 P_{Kr} - \frac{17,51}{b} \quad (\text{III.21})$$

La pression totale est donc une fonction linéaire de la pression de krypton mise au départ.

III.1.4. Quelques considérations spectrales au sujet du rayonnement engendré au 3^{ème} harmonique

Comme le montrent les courbes 25, l'accord de phase dans le krypton se fait au voisinage d'une transition et par suite dans une zone où la dispersion du gaz varie fortement avec la longueur d'onde.

Par conséquent, la plage de longueurs d'ondes sur laquelle l'accord de phase peut être réalisé est forcément très limitée. Nous allons évaluer cette plage de balayage en nous aidant des données de R. Mahon et coll. [63], dans le but de savoir si ce phénomène présente de graves inconvénients pour des balayages de grande amplitude.

Pour un mélange de gaz krypton-argon, la valeur du désaccord de phase est donnée par la relation (III.15). En considérant la longueur d'onde comme seul paramètre variable et si nous avons optimisé la valeur de F (relation III.11) pour la longueur d'onde λ_0 , alors pour la longueur d'onde λ , nous pouvons réécrire (III.15) sous la forme suivante :

$$\Delta k(\lambda) = N_{Kr} C_{Kr}(\lambda) - \frac{C_{Ar}(\lambda)}{C_{Ar}(\lambda_0)} \left[\frac{2}{b} + N_{Kr} C_{Kr}(\lambda_0) \right] \quad (\text{III.22})$$

La variation de $\chi_{Kr}^{(3)}$ est très faible dans les plages de longueurs d'ondes que nous allons envisager ; par ailleurs, comme nous l'avons déjà noté, $\chi_{Ar}^{(3)}$ est négligeable. En reportant cette nouvelle valeur de Δk dans (III.16c), nous avons la possibilité de tracer les courbes $P_{3V}/P_V^3(\lambda)$ pour différentes valeurs de P_{Kr} à b constant, ou pour différentes

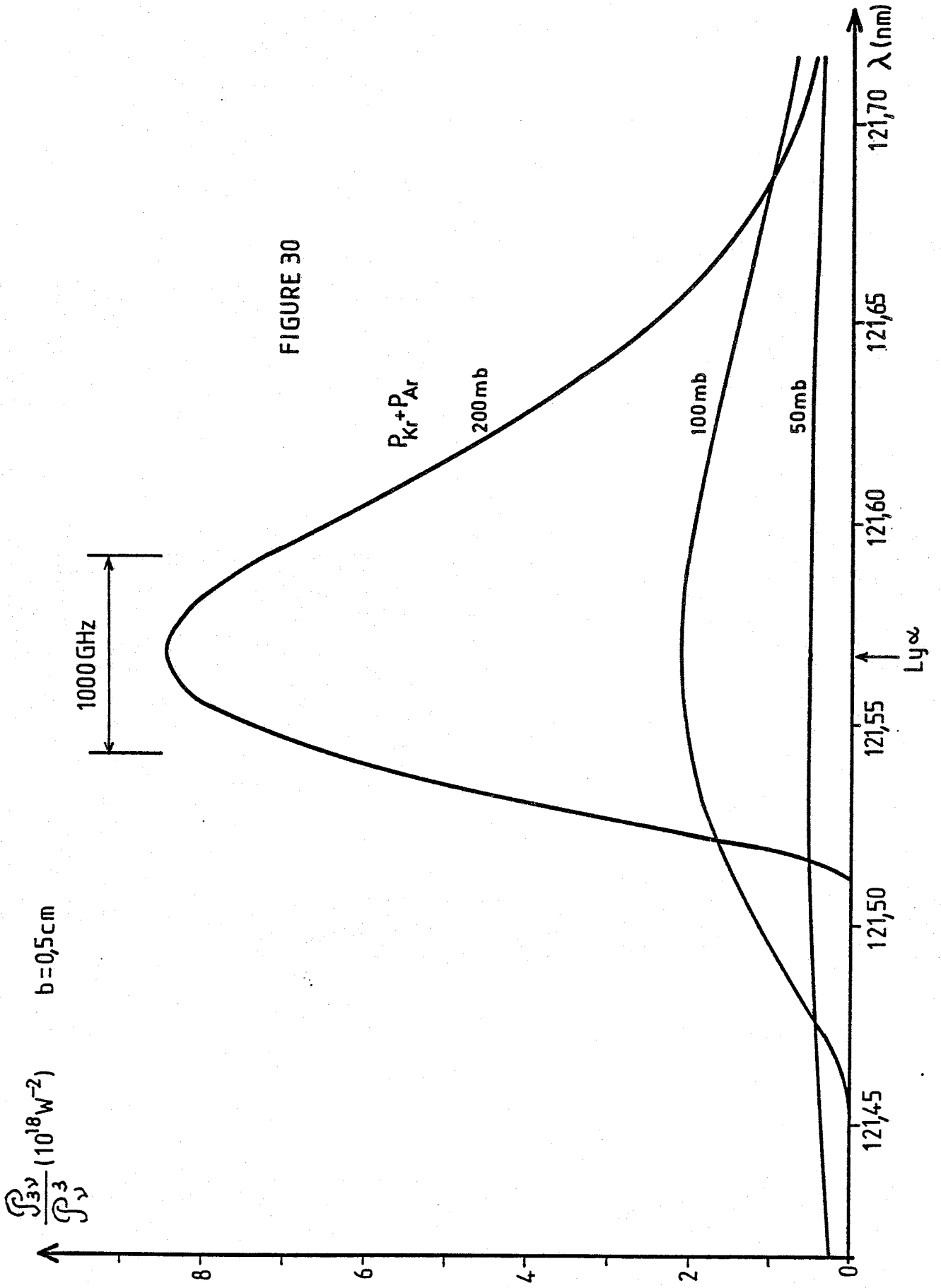


FIGURE 30

valeurs de b avec P_{Kr} et P_{Ar} optimisés. Les valeurs numériques utilisées pour C_{Ar} et C_{Kr} sont tirées de la référence [63].

La figure (30) représente de telles courbes pour $b = 0,5$ cm.

On a indiqué un intervalle de 1000 GHz autour de la longueur d'onde de Lyman α ; la variation correspondante de la fonction $P_{3\nu}/P_{\nu}^3(\lambda)$ est de 25 % à 200 mb, on devra par conséquent en tenir compte pour faire des balayages de grande amplitude et éventuellement choisir une pression plus faible bien qu'il y ait perte de puissance.

III.1.5. Quelques remarques de synthèse

Nous retiendrons de cette partie théorique, concernant le triplage de fréquence, les éléments essentiels suivants : (cas d'un faisceau fondamental focalisé)

- Si le rayonnement fondamental possède un mode gaussien TEM_{00} de paramètre confocal b et de taille ω_0 , le rayonnement engendré au troisième harmonique possède également un mode gaussien TEM_{00} de même paramètre confocal b et donc de taille $\omega_0/\sqrt{3}$.

- La puissance du rayonnement engendré est soumise à une condition d'accord de phase

$$b\Delta k = -2$$

Pour réaliser cette condition on peut agir soit sur le paramètre confocal b soit sur le désaccord de phase Δk par l'intermédiaire de la pression du gaz. On obtient un Δk négatif en utilisant un milieu de dispersion globalement négative.

- Les méthodes les plus directes d'action sur la puissance engendrée sont :

* L'augmentation de la puissance fondamentale (dans la limite d'éventuels claquages ou saturations) ; la puissance du troisième harmonique augmente proportionnellement au cube de celle-ci.

* L'augmentation du nombre d'atomes du milieu actif (donc de la pression) ; mais dans ce cas il est indispensable de rétablir la condition d'accord de phase, soit en diminuant la valeur de b , soit en effectuant un mélange avec un milieu de dispersion positive. On peut alors obtenir un gain théorique de plus de 100.

- La dispersion du milieu variant fortement avec la longueur d'onde, la condition d'accord de phase n'est à peu près réalisée que sur une faible plage de longueurs d'ondes (typiquement quelques Å à Lyman α).

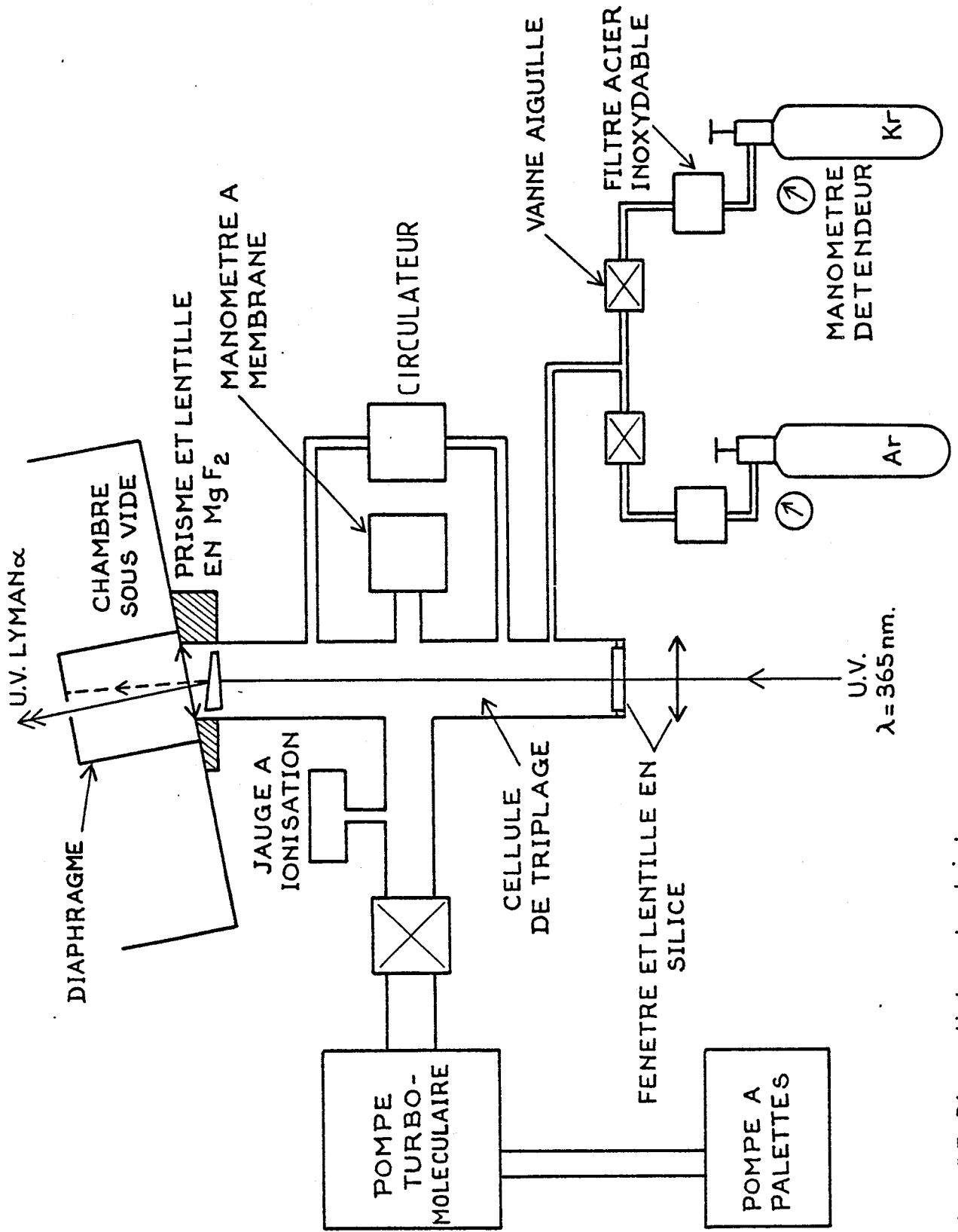


FIGURE 31 cellule de triplage

III.2. GENERATION D'UN RAYONNEMENT COHERENT A LA LONGUEUR D'ONDE DE LYMAN α

III.2.1. Le montage expérimental

Le montage expérimental pour produire un rayonnement cohérent par triplage de fréquence est très simple. Il se compose essentiellement d'une cellule, dans laquelle on réalise le mélange krypton-argon, munie d'une optique adéquate pour transmettre le rayonnement UVL engendré. Une cellule de détection, sélective en longueur d'onde, permet par ailleurs le contrôle de la stabilité de ce rayonnement et les réglages du faisceau dans la zone d'interaction.

A) La cellule de triplage

Le schéma d'ensemble du système accompagnant la cellule de triplage est représenté figure (31). La cellule elle-même est un tube en acier inoxydable de diamètre intérieur 16 mm et de longueur 200 mm. Cette cellule peut être pompée jusqu'à une pression de 10^{-6} mb par une pompe turbomoléculaire (TPH 040 Balzers) de façon à éliminer proprement toutes les impuretés qui risqueraient d'absorber l'U.V.L.. Le contrôle du vide est réalisé par une jauge à ionisation pour les basses pressions et par un manomètre capacitif à membrane d'acier (modèle 222 BHS - MKS Baratron) pour la mesure des pressions de gaz rare. L'alimentation en argon et krypton se fait par l'intermédiaire de filtres poreux en acier

inoxydable (\emptyset des pores 5 μm) de façon à éliminer les poussières pouvant provoquer des claquages au point de focalisation du laser. Des vannes à aiguille assurent un réglage fin de la pression dans la cellule.

Les gaz rares sont difficilement miscibles, c'est pourquoi nous avons disposé un petit circulateur en circuit fermé sur la cellule afin d'obtenir un mélange homogène lorsqu'on utilise le mélange krypton-argon.

La partie optique de la cellule comporte une fenêtre d'entrée en silice, un prisme et une lentille en fluorure de magnésium (MgF_2) pour le rayonnement U.V.L.. Les caractéristiques du fluorure de magnésium sont les suivantes : [64 à 68]

	$\lambda = 365 \text{ nm}$	$\lambda = 121,6 \text{ nm}$
indice ordinaire	1,386	1,618
indice extraordinaire	1,398	1,625
transmission (compte-tenu des pertes par réflexion)	> 95 %	~ 50 % pour 3 mm d'épaisseur

Le fluorure de magnésium est d'une utilisation beaucoup moins délicate que le fluorure de lithium (LiF) ; ce dernier bien qu'ayant un coefficient de transmission légèrement supérieur à la longueur d'onde de Lyman α , est hygroscopique, se clive facilement et a une résistance mécanique moins bonne [68]. Le fluorure de magnésium se manipule presque aussi facilement que la silice.

Avec le prisme, on sépare les rayonnements à $\lambda = 365 \text{ nm}$ et à $\lambda = 121,6 \text{ nm}$ de façon à n'avoir que cette dernière lon-

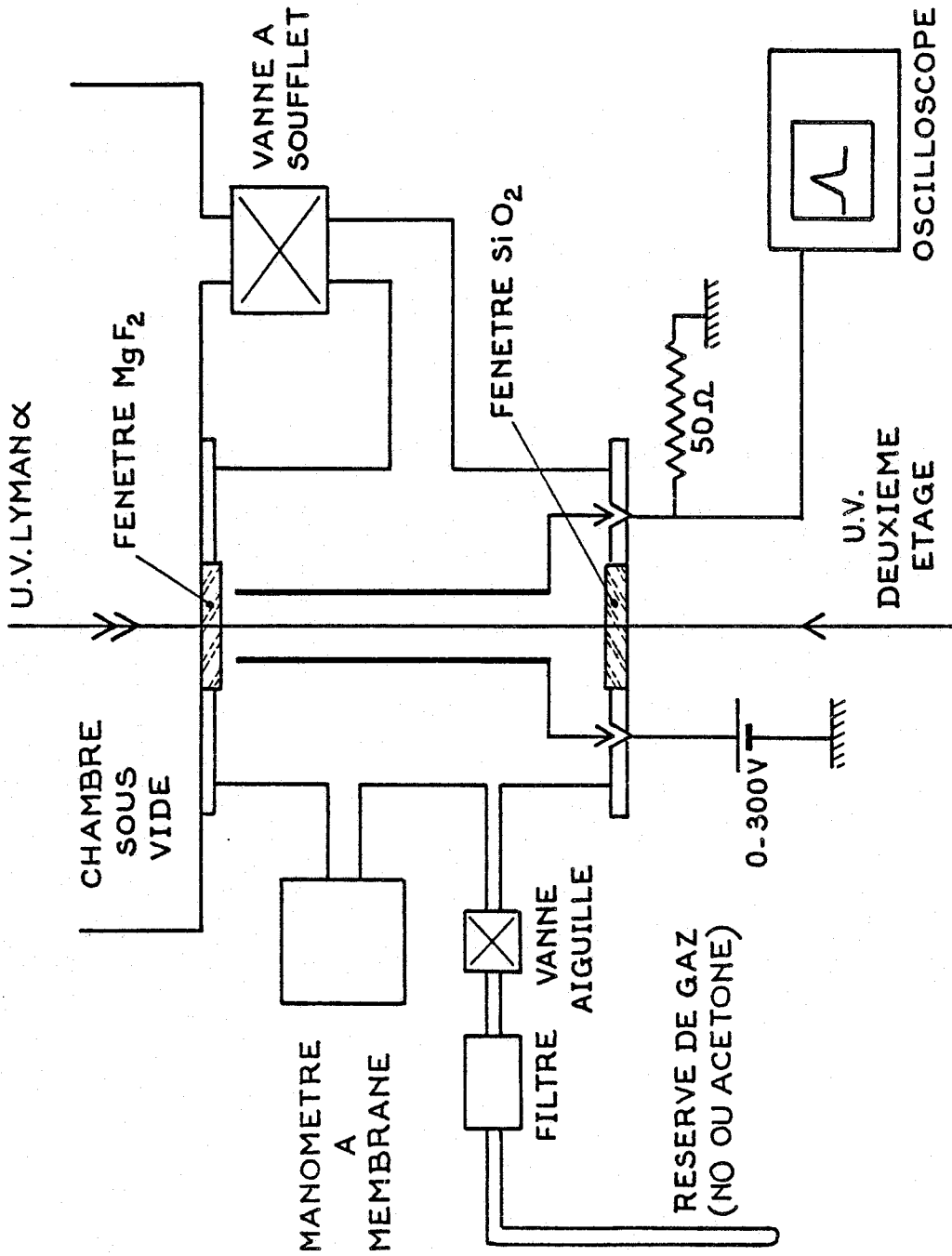


FIGURE 32 cellule de détection de l'ultra-violet lointain

gueur d'onde dans la zone d'interaction. L'angle du prisme a été choisi assez petit (environ 20°) pour pouvoir limiter l'épaisseur, donc l'absorption, sur toute sa dimension. Un diaphragme arrête le faisceau laser U.V. (365 nm) à 4 cm de la zone d'interaction.

Une lentille de 60 mm de distance focale permet, suivant la position du point de focalisation dans la cellule, d'ajuster à volonté la focalisation sur le jet.

B) La cellule de détection de l'ultraviolet lointain

Certaines molécules, comme le monoxyde d'azote (NO) ou l'acétone, peuvent être photoionisées par un rayonnement à la longueur d'onde triple. Ceci est intéressant pour pouvoir détecter sélectivement l'U.V.L. que nous formons dans la cellule de triplage. [69 à 73].

Il s'agit donc de collecter les ions formés au passage du faisceau laser dans la cellule contenant par exemple du monoxyde d'azote à la pression requise. Le montage réalisé est schématisé figure (32). La collection des ions est effectuée par des plaques planes et parallèles écartées de 1 cm ayant entre elles une différence de potentiel ajustable. Le signal impulsionnel délivré au moment de l'impulsion laser peut être visualisé sur l'écran d'un oscilloscope ou, après intégration, sur un enregistreur.

Le système d'alimentation en gaz comporte une vanne à aiguille et un filtre poreux en acier inoxydable. Le pompage

de cette cellule est effectué directement sur l'enceinte intermédiaire. Le contrôle de la pression est réalisé par un manomètre capacitif à membrane métallique (inconel).

Une fenêtre en MgF_2 laisse passer l'U.V.L. côté jet et une fenêtre en silice, de l'autre côté, donne la possibilité d'exciter les atomes d'hydrogène avec un deuxième étage laser sans perturber la mesure de puissance sur le premier étage.

L'ensemble de cette cellule est fabriqué en acier inoxydable ; le monoxyde d'azote attaque la plupart des autres métaux ou alliages.

III.2.2. Caractérisation de l'émission lumineuse à la longueur d'onde de Lyman α

A) Evaluation de la puissance de l'émission

Etant donné la faible intensité et la très courte durée de l'impulsion lumineuse dans l'U.V.L., il semble difficile de mesurer la puissance de l'émission par des moyens conventionnels (calorimètres, détecteurs à semi-conducteurs ou pyroélectriques étalonnés...), soit qu'ils soient trop peu sensibles, soit que l'on connaisse mal leurs caractéristiques à la longueur d'onde de Lyman α .

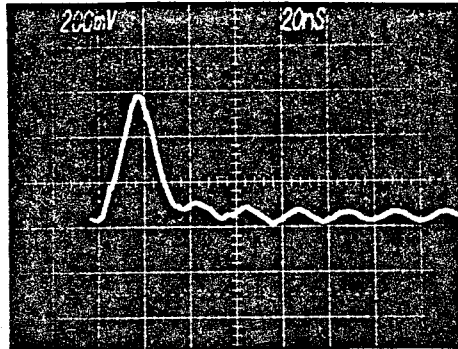
L'utilisation de la cellule que nous venons de décrire doit au contraire permettre une évaluation absolue de

la puissance. On connaît bien les propriétés de photoionisation du monoxyde d'azote jusqu'aux longueurs d'ondes marquant la limite de transmission des matériaux ($\lambda \sim 107$ nm). En particulier, la section efficace de photoionisation, qui est importante pour $107 < \lambda < 130$ nm ($\sim 10^{-18}$ cm²), chute brusquement vers $\lambda = 134$ nm qui correspond à la première limite d'ionisation du NO [69,71]. De ce fait, tout rayonnement de longueur d'onde supérieure à 134 nm ne peut provoquer d'ionisation des molécules du gaz et par conséquent ne peut être détecté par le système. Celui-ci présente donc une certaine sélectivité en longueur d'onde que nous avons mise à profit ici puisque le rayonnement à $\lambda = 365$ nm, de forte intensité, ne peut pas provoquer d'ionisation dans ces conditions, et ne doit donc pas perturber la mesure à $\lambda = 121,6$ nm.

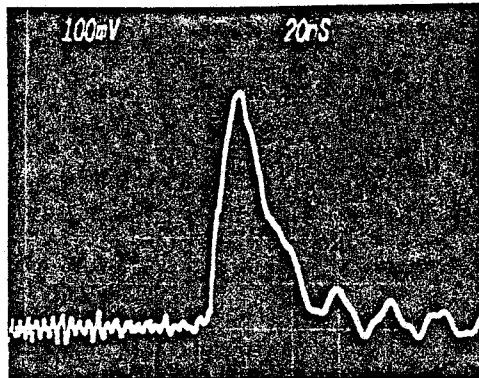
Par ailleurs, le rendement quantique de photoionisation du NO à la longueur d'onde de Lyman α vaut 81 % ; le coefficient d'absorption k défini par l'équation $I = I_0 \exp(-kx)$ vaut 65 cm⁻¹ à la même longueur d'onde (rapporté à la pression atmosphérique). Pour que le faisceau U.V.L. soit absorbé à 99 % sur une longueur de 10 cm (longueur des plaques), il suffit donc d'une pression de $1,2 \cdot 10^{-2}$ torr (1,6 Pa).

A l'aide du montage électrique décrit par la figure (32), nous pouvons mesurer le courant induit dans le circuit par l'ionisation de N molécules de NO pendant le temps dt de l'impulsion électrique :

$$i = \frac{N}{dt} e \quad (e \text{ est la charge de l'électron})$$



ACETONE



MONOXYDE D'AZOTE

Allure des impulsions de tension recueillies a la sortie de la cellule de détection

(tous les paramètres relatifs a ces deux oscillogrammes sont ceux du tableau de la page 120)

FIGURE 33

La tension mesurée aux bornes de la résistance $R = 50 \Omega$ est donc :

$$u = R \frac{N}{dt} e$$

En supposant que le faisceau lumineux transporte N_p photons pendant le même temps dt , on a :

$$N = QN_p$$

où Q est le rendement de photoionisation.

Si on assimile l'impulsion lumineuse à un créneau de durée dt' , la puissance crête est donnée par :

$$P_c = \frac{h\nu N_p}{dt'}$$

où h est la constante de Planck et ν la fréquence du rayonnement lumineux.

$$\text{Soit en définitive } P_c = \frac{u}{Re} \cdot \frac{h\nu}{Q} \cdot \frac{dt}{dt'}$$

Nous avons fait deux séries de mesures ; l'une avec du monoxyde d'azote, l'autre avec de l'acétone. Les paramètres expérimentaux sont résumés dans le tableau de la page 120 (et illustrés par la figure 33 qui correspond à ces mesures).

Ces deux séries de mesures, réalisées dans des conditions assez différentes, sont en bon accord l'une avec l'autre si on considère les différences entre les paramètres. Elles sont aussi tout à fait cohérentes avec les mesures faites ailleurs.

Dans la suite des expériences, nous avons utilisé seulement l'acétone comme gaz de détection. En effet, le mo-

noxyde d'azote est toxique et il est préférable de ne pas en conserver une réserve permanente dans la salle d'expérience. D'autre part nous avons eu beaucoup de difficulté à obtenir du NO de pureté suffisante. Le gaz commercial contient des impuretés diverses (NO_2 , N_2 , H_2O ...) que l'on peut éliminer partiellement en effectuant des distillations successives sous vide. S'il reste des impuretés, la mesure est entachée d'une incertitude d'autant plus importante que le faisceau fondamental (à $\lambda = 365\text{nm}$) ionise ces impuretés.

	<u>NO</u>	<u>Acétone</u>
Pression	~ 1 mb	0,5 mb
Puissance du faisceau fondamental ($\lambda = 365\text{nm}$)	0,5 MW	1 MW
Paramètre confocal du faisceau fondamental	0,5 cm	0,33 cm
Durée de l'impulsion lumineuse dt'	8 ns	8 ns
Tension moyenne u observée	0,25 V	0,55 V
Durée de l'impulsion électrique dt (dépend de la tension appliquée)	25 ns	18 ns
Pression de krypton	300 mb	350 mb
Rendement de photoionisation	0,81	0,1
Transmission de l'optique MgF_2	0,5/3 mm	0,5/3 mm
Puissance crête mesurée à $\lambda = 121,6\text{ nm}$	0,2 W	2 W
Puissance crête estimée au niveau de la zone d'interaction	0,4 W	4 W
Puissance crête estimée au niveau de la cellule de triplage	0,8 W	8 W
Puissance théorique formule (III.10)	2,4 W	26 W

Bien que le rendement quantique de l'acétone soit moins bon que celui du NO, il est très facile à utiliser et

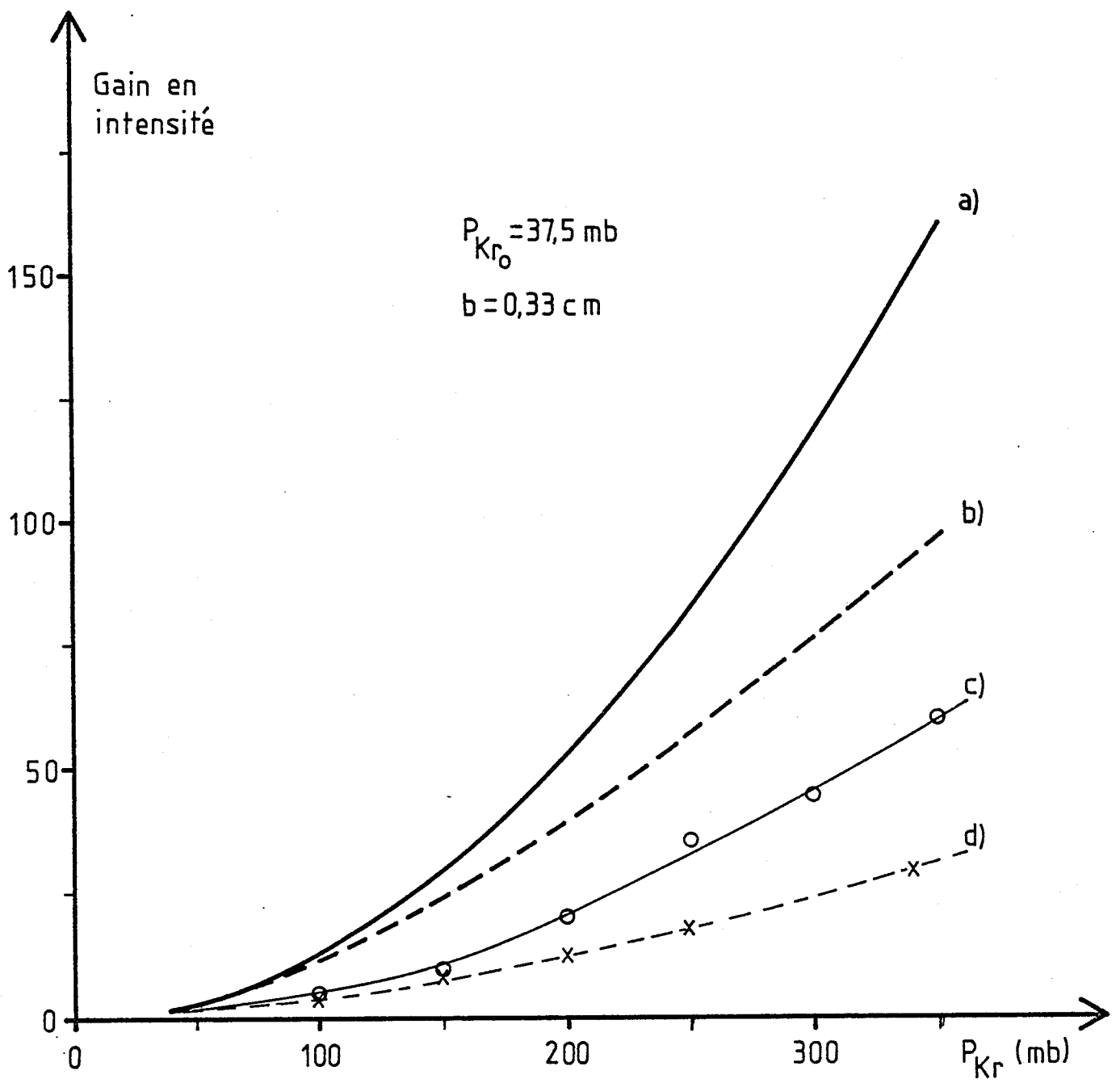


FIGURE 34

est complètement insensible au rayonnement à 365 nm [73]. La pression optimale de fonctionnement est plus faible, de l'ordre de 0,5 mb.

L'écart entre les valeurs mesurées et les valeurs théoriques peut s'expliquer d'une part par des considérations d'absorption, d'autre part par la forme spatiale du faisceau qui n'est pas parfaitement gaussienne.

B) Evolution de la puissance en fonction de la pression de krypton

La dépendance en P_v^3 de la puissance P_{3v} émise dans l'U.V.L. a été vérifiée mais n'a pas fait l'objet d'une étude systématique car ce n'est pas dans notre expérience un paramètre critique à ajuster. (on peut cependant la mettre en évidence dans les résultats du tableau au paragraphe précédent où seuls diffèrent légèrement les pressions de krypton et le paramètre confocal).

Au contraire, les relations entre la puissance émise et la pression de krypton d'une part, entre la pression de krypton et la pression de krypton + argon d'autre part sont très intéressantes à déterminer pour se placer dans des conditions expérimentales précises.

Les courbes de la figure 34 illustrent le gain en intensité que l'on obtient en augmentant la pression de krypton (et sous-entendu, en rétablissant l'accord de phase par une augmentation de la pression d'argon).

La courbe a) est la courbe théorique (voir figure 29 au paragraphe III.1.3). La courbe c) a été réalisée après une purge et un pompage à basse pression (10^{-6} mb) de toute la tuyauterie des gaz rares. La courbe d) a été réalisée sans prendre aucune précaution particulière.

La différence entre la courbe théorique et les courbes expérimentales est due essentiellement à l'absorption propre des gaz et des impuretés qu'ils contiennent à la longueur d'onde de Lyman α , ainsi qu'à la forme du faisceau.

Si l'on ne tient pas compte de l'absorption, le gain est donné par la relation (III.20). En supposant que l'on focalise au centre de la cellule de longueur l , cette relation devient en tenant compte de l'absorption :

$$G = \left(\frac{e^2 P_{Kr}^2}{4 P_{Kr_0}^2} \right) \exp \left[-\alpha_{Kr} \frac{l}{2} (P_{Kr} - P_{Kr_0}) \right] \cdot \exp \left[-\alpha_{Ar} \frac{l}{2} P_{Ar} \right]$$

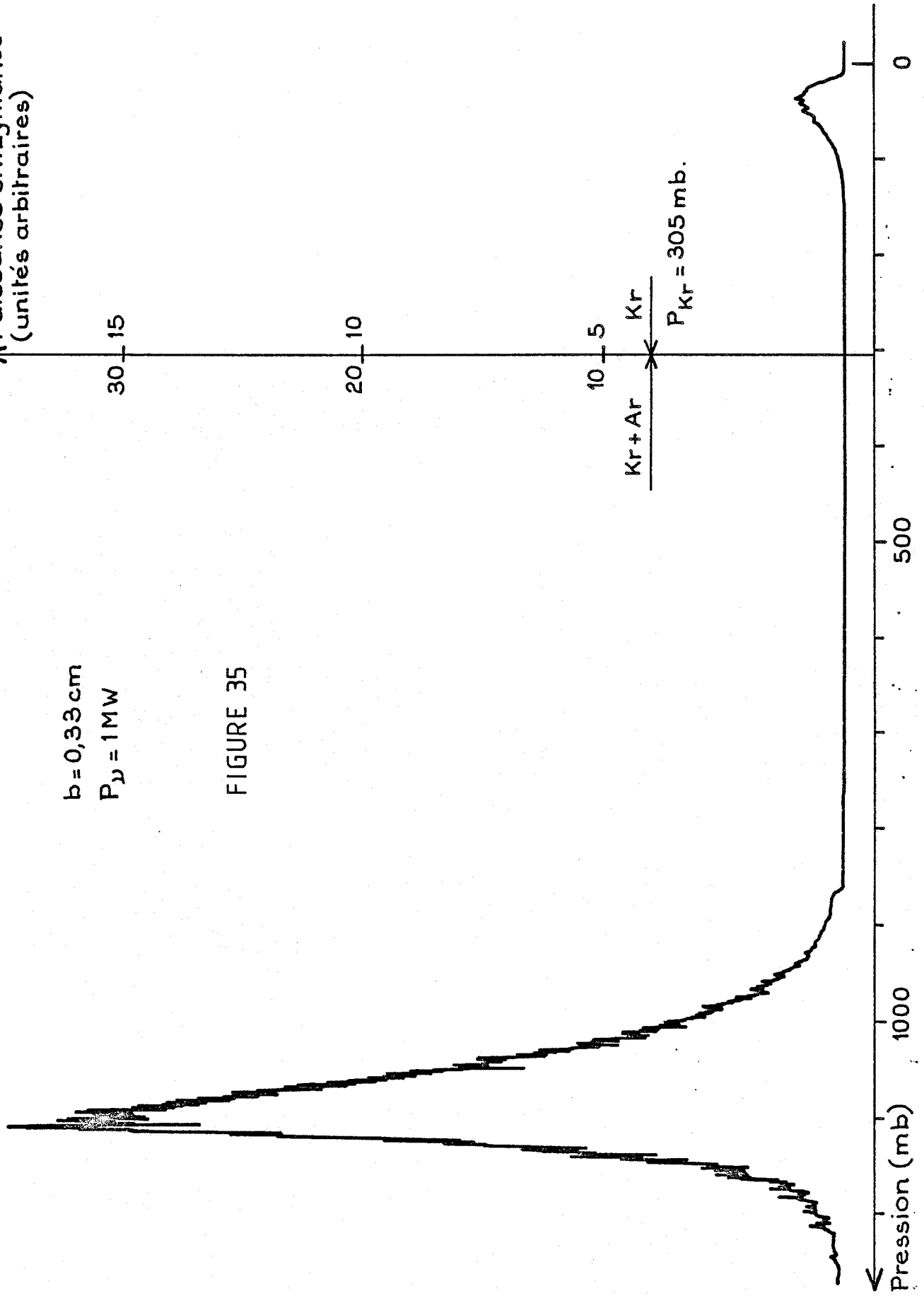
où α_{Kr} et α_{Ar} sont les coefficients d'absorption du krypton et de l'argon à $\lambda = 121,6$ nm. ($\alpha_{Kr} = 1,1 \cdot 10^{-5}$ mb.cm $^{-1}$ et $\alpha_{Ar} = 5,1 \cdot 10^{-5}$ mb.cm $^{-1}$) [23]. Cette relation est représentée par la courbe b) et on remarque qu'il subsiste encore un écart notable avec les points expérimentaux. L'élimination de l'absorption et des imperfections de forme du faisceau sont donc d'une importance primordiale pour la génération d'un rayonnement de grande intensité à la longueur d'onde de Lyman α avec cette technique ; l'effet d'absorption étant d'autant plus sensible que la pression des gaz est élevée.

La figure 35 est un enregistrement obtenu en faisant varier la pression de gaz dans la cellule de triplage. On y

↑ Puissance U.V. Lyman α
(unités arbitraires)

$b = 0,33 \text{ cm}$
 $P_{\gamma} = 1 \text{ MW}$

FIGURE 35



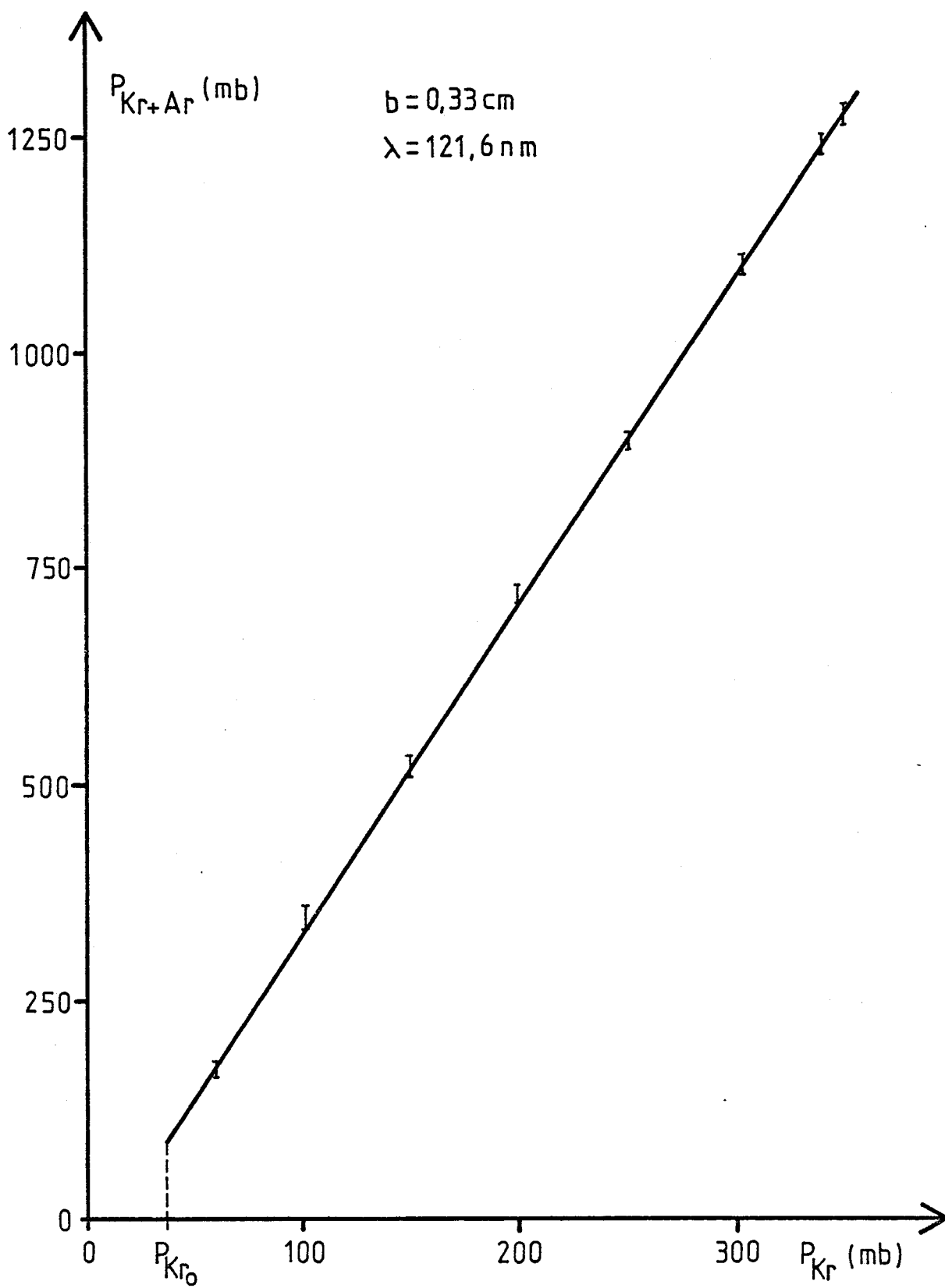
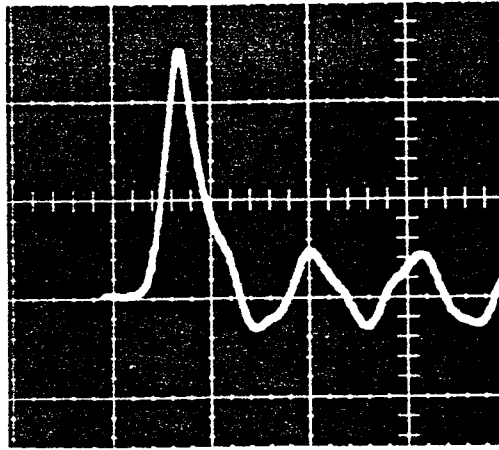


FIGURE 36

note l'effet spectaculaire d'augmentation de l'intensité de l'U.V.L. lorsqu'on réalise un accord de phase avec le mélange krypton-argon. L'allure de cette courbe est à comparer avec la courbe théorique figure (28), elles sont en bon accord.

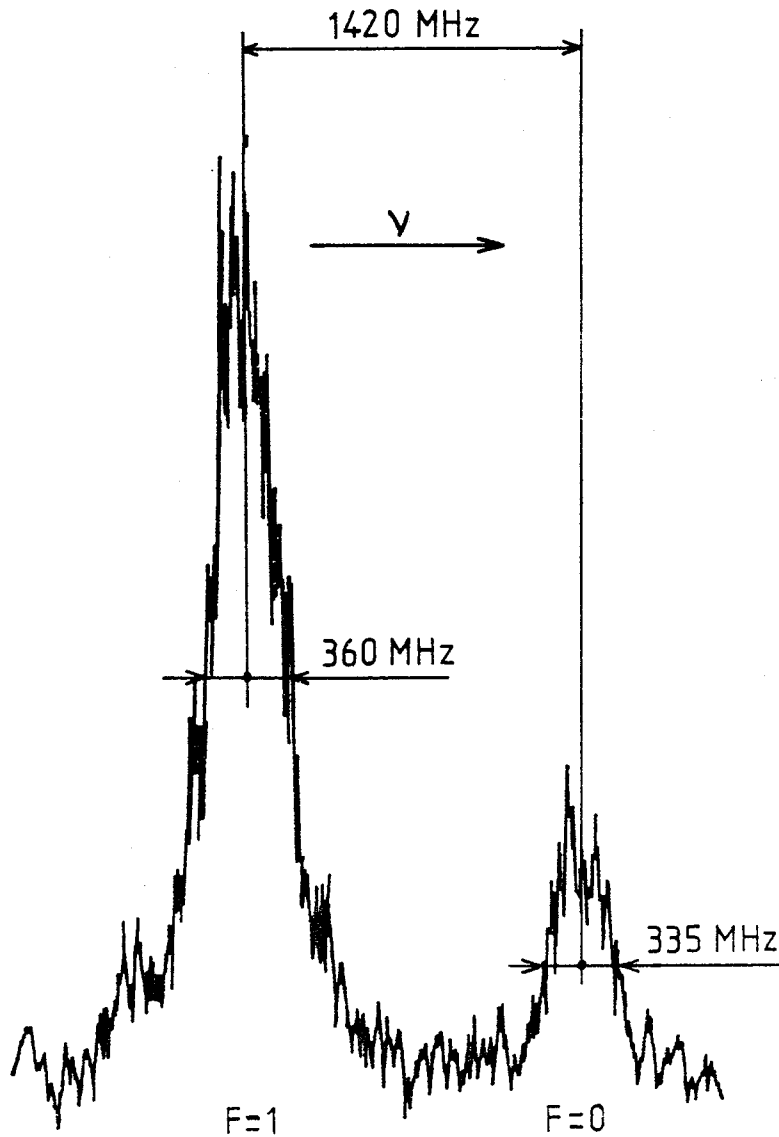
Pour les manipulations de routine, nous avons déterminé la caractéristique fournissant la pression totale de krypton et d'argon correspondant à l'accord de phase pour une pression de krypton donnée (figure 36). Les points expérimentaux s'ajustent très bien sur la courbe théorique de sorte que si on connaît le paramètre confocal du faisceau, cette caractéristique peut être déterminée par le calcul avec une bonne précision (relation III.21).

Enfin, dans la pratique nous nous sommes limités à une pression de krypton de 350 mb (ce qui donne une pression totale voisine de la pression atmosphérique), ceci pour les raisons suivantes. Tout d'abord, le montage n'était pas conçu pour travailler à une pression notablement supérieure à la pression atmosphérique. Ensuite, compte tenu de la puissance couramment utilisée de 1 MW crête du faisceau fondamental et de son paramètre confocal, cette pression de krypton correspond au seuil de claquage dans le gaz ; on ne gagnerait donc rien à augmenter la pression. Enfin, nous avons remarqué qu'aux pressions plus élevées la puissance d'U.V.L. est moins stable ; une moins bonne homogénéité du mélange en est sans doute la cause.



échelle de temps:
20 nanosecondes par
carreau

a) durée de l'impulsion lumineuse



b) transition $1s_{1/2}(F) \rightarrow 2p_{3/2}$ de l'atome d'hydrogène

FIGURE 37

C) Caractérisation spectrale

La caractérisation spectrale de l'émission cohérente à Lyman α a été menée suivant deux axes différents :

- évaluation de la largeur spectrale de l'émission lumineuse, donc de la résolution du système.

- mesure de la dynamique de balayage en longueur d'onde sans changement des paramètres de l'accord de phase.

α) **Evaluation de la résolution du système**

La résolution théorique du système est imposée par la durée de l'impulsion lumineuse si par ailleurs on suppose la stabilité de l'émission notablement meilleure que la largeur spectrale qui correspond à cette durée.

Dans notre cas, l'analyse des impulsions dans l'U.V.L obtenues à l'aide de la cellule de détection à NO, tend à penser que leur durée est inférieure à 10 ns, de l'ordre de 8 ns (figure 37). Dans ces conditions, et si on suppose la forme temporelle de l'impulsion approximativement gaussienne, la largeur spectrale est donnée par : [33]

$$\Delta\nu = \frac{2 \ln 2}{\pi \Delta t}$$

où Δt est la largeur de l'impulsion à mi-hauteur.

Cependant, nous ne devons pas oublier que la génération de ce rayonnement est issue d'un doublage puis d'un tri-

plage de fréquence ; par conséquent, la limitation par transformée de Fourier est effective sur le rayonnement à la longueur d'onde fondamentale de 730 nm. A la longueur d'onde de Lyman α , la largeur spectrale est six fois plus importante que dans le rouge, soit ici :

$$\Delta\nu \approx 240 \text{ MHz}$$

L'analyse de la largeur spectrale a été réalisée indirectement en faisant la spectroscopie de la raie Lyman α sur jet atomique d'hydrogène. Sur la figure (37) est reproduit un enregistrement de deux des composantes de cette raie, à faible vitesse de balayage. La séparation des deux composantes hyperfines visibles sur ce spectre est parfaitement connue (1420 MHz) ce qui nous a permis de faire une évaluation de la largeur à mi-hauteur des raies : environ 350 MHz.

En réalité cette largeur résulte de la convolution du profil Doppler résiduel dû au jet et du profil spectral du laser U.V.L.. Au chapitre IV, l'élargissement Doppler résiduel est estimé à : $210 < \Delta\nu_D < 315$ MHz, soit du même ordre de grandeur que la largeur spectrale théorique. On peut donc estimer que la largeur de 350 MHz obtenue ici est en excellent accord avec ce qu'on peut attendre de mieux compte-tenu de la durée de l'impulsion et de la collimation du jet.

Notons enfin qu'à notre connaissance une telle résolution n'a jamais été atteinte dans l'ultraviolet lointain.

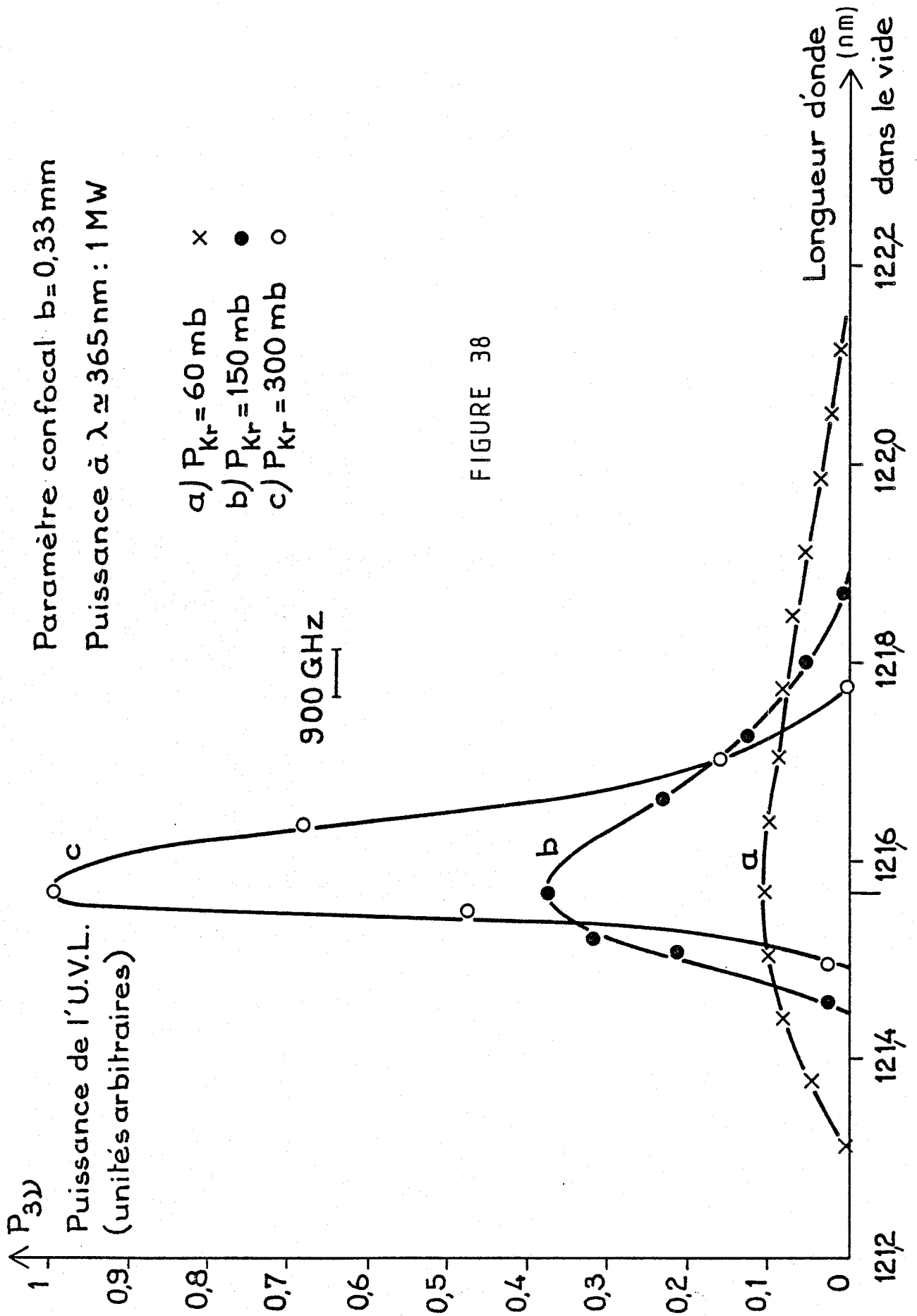


FIGURE 38

β) Mesure de la dynamique de balayage en longueur d'onde

Il est courant que la réalisation d'un spectre exige une dynamique de balayage de plusieurs cm^{-1} et il est préférable d'avoir à intervenir au minimum sur les paramètres susceptibles de modifier la puissance du laser. Nous avons déjà remarqué dans la partie théorique de ce chapitre que la dynamique de balayage dépend fortement de la pression de krypton. Nous l'avons vérifié expérimentalement et nous retrouvons en cela aussi un bon accord avec la théorie. Sur la figure 38 nous avons reporté les points expérimentaux pour plusieurs valeurs de la pression de krypton, l'accord de phase étant optimisé avec la pression adéquate d'argon pour la longueur d'onde de Lyman α . Les intensités relatives ont été normalisées par rapport au maximum d'intensité mesuré pour $P_{\text{Kr}} = 300 \text{ mb}$. Les courbes ont été calculées à partir de la relation (III.22) avec les valeurs de C_{Ar} et C_{Kr} déduites de [63] et normalisées par rapport au maximum obtenu pour chaque valeur de P_{Kr} . Le paramètre confocal expérimental est plus faible que celui qui a servi pour le calcul des courbes de la figure (30), l'amplitude balayable est donc en réalité un peu plus grande. On a indiqué, pour comparaison, la dynamique du système laser dont nous disposons (900 GHz).

D) Résumé des performances

En conclusion de ce chapitre, nous avons fait la synthèse des performances du système laser complet, c'est-à-dire la caractérisation de tous les paramètres de l'émission laser à la longueur d'onde de Lyman α .

Puissance crête de l'impulsion lumineuse avec un mélange Kr-Ar (à la pression de 350 mb)	8 W (avec 1 MW à $\lambda = 365$ nm) estimée à 20 W (avec 1,4 MW)
Puissance crête de l'impulsion lumineuse avec du krypton seul (pression de 37 mb et un paramètre confocal de 0,33 cm)	0,15 W (avec 1 MW à $\lambda = 365$ nm)
Durée de l'impulsion lumineuse	$\sim 8 \cdot 10^{-9}$ s
Taux de répétition	10 Hz
Largeur spectrale	< 350 MHz
Plage de fréquences continûment balayable	> 900 GHz (30 cm^{-1})
Stabilité en fréquence à court terme	± 18 MHz
Dérive en fréquence à long terme	< 30 MHz par heure

Ces paramètres peuvent être comparés avec ceux d'une autre source de rayonnement qui opère aussi dans l'ultra-violet lointain : les anneaux de stockage produisant le rayonnement synchrotron. On prévoit que l'intensité du faisceau lumineux issu de Super ACO (Orsay), lorsqu'il sera doté d'un onduleur, sera de 10^7 photons par angström et par impulsion à la longueur d'onde de 122 nm. Les autres caractéristiques sont les suivantes :

taux de répétition 4 MHz

durée de l'impulsion 1 à 1,2 ns

divergence $100 \text{ mrd} \times 10 \text{ mrd}$ (suivant deux axes orthogonaux).

En utilisant les mêmes unités, l'intensité de notre système laser est de $3 \cdot 10^{14}$ photons. Å^{-1} par impulsion et la divergence d'environ 0,1 mrd.

Dans certaines conditions, en particulier si le domaine de balayage en fréquence n'est pas trop large, la densité spectrale de rayonnement étant beaucoup plus importante avec un système laser tel que celui que nous avons réalisé, celui-ci peut être préféré au rayonnement synchrotron.

CHAPITRE IV

LE JET D'HYDROGENE ATOMIQUE

IV. LE JET D'HYDROGENE ATOMIQUE

La réalisation de ce jet n'a pas posé de problème particulier si ce n'est pour la source d'hydrogène atomique elle-même, de mise au point un peu plus délicate. On sait que l'hydrogène moléculaire est pompé plus efficacement que la plupart des autres éléments à cause de sa faible viscosité ; c'est vraisemblablement le cas aussi avec l'hydrogène atomique. Cependant, l'hydrogène se piège mal par des diaphragmes refroidis même à l'hélium liquide, et la pression partielle d'hydrogène reste toujours élevée. C'est pourquoi, dans les systèmes où l'on veut éliminer le plus possible l'hydrogène (atomique en particulier) on est amené à enduire les parois réfrigérantes de charbon actif, ce qui aide au piégeage de l'hydrogène [74].

Nous avons décidé de réaliser, dans un premier temps, un pompage classique, sans paroi à charbon actif. Les spectres enregistrés ont montré que la pression résiduelle d'hydrogène est toujours très inférieure à la pression dans le jet. Cependant, pour de futures expériences en présence d'un champ magnétique intense, on devra diminuer beaucoup plus sérieusement la pression résiduelle d'hydrogène pour éviter les décharges de Penning et donc employer un pompage cryogénique.

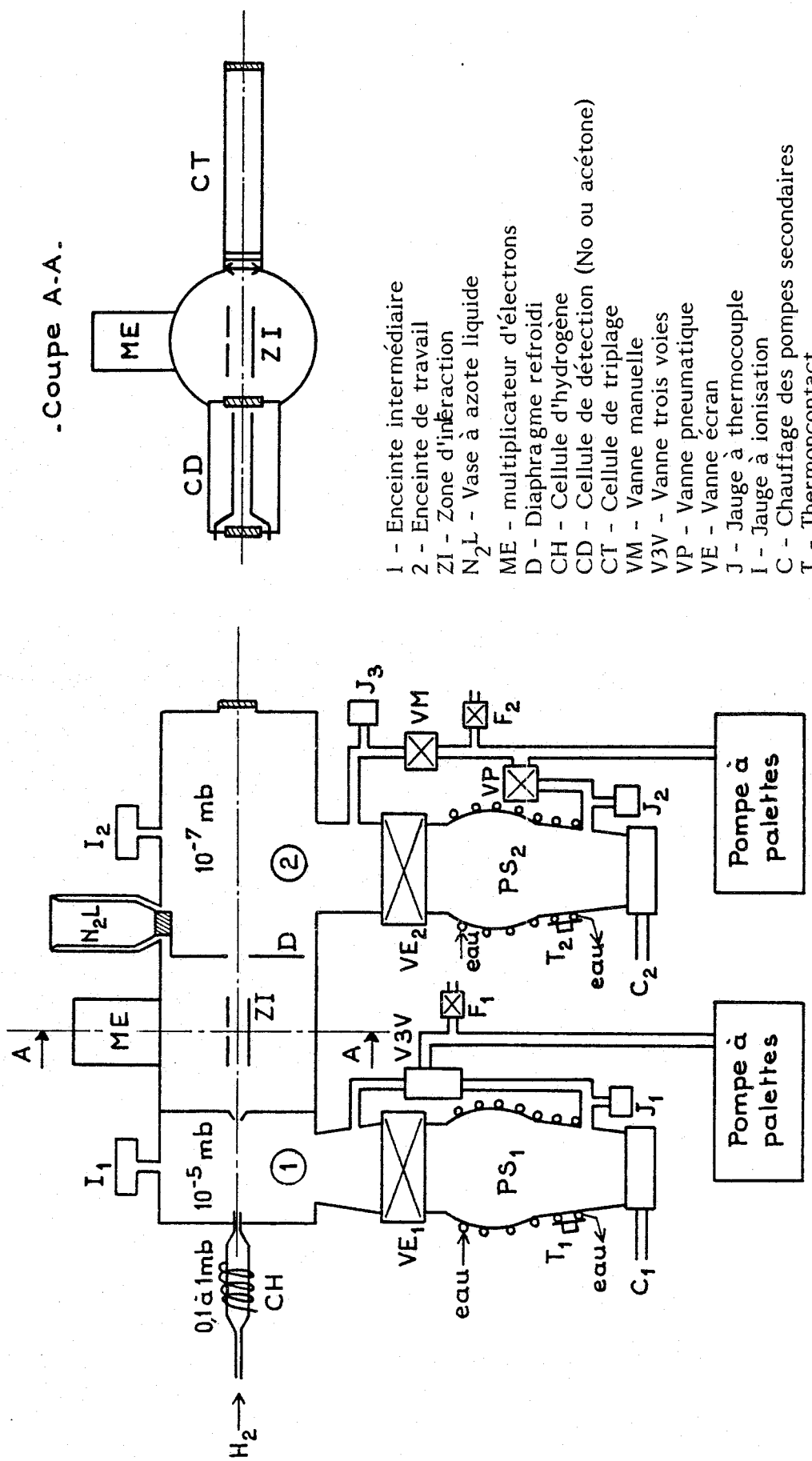


FIGURE 39

IV.1. LE SYSTEME DE POMPAGE

Pour faire de la spectroscopie à haute résolution sur jet atomique il est bon de travailler dans les meilleures conditions possibles de vide, c'est-à-dire vers 10^{-7} mb* ou au-dessous. Les pompes à diffusion d'huile donnent des pressions plus faibles que cette valeur ; on peut en outre ajouter des parois refroidies à l'azote liquide, ce qui améliore la vitesse de pompage surtout pour les molécules lourdes.

La figure (39) représente le système de pompage avec les indications des pressions dans les différentes enceintes au cours d'un fonctionnement normal. Pour que la décharge dans l'hydrogène (obtenue par excitation radio-fréquence) soit stable, il est nécessaire d'y maintenir une certaine pression (de l'ordre d'une fraction de millibar), et compte-tenu du diamètre et de la longueur du capillaire (1 mm x 30 mm) le débit d'hydrogène à une pression de 10^{-7} mb est important. La solution qui consiste à disposer deux enceintes indépendantes en pompage différentiel offre plusieurs avantages :

- Il n'est pas indispensable d'utiliser un groupe de pompage de fort débit, la pression dans l'enceinte intermédiaire étant maintenue à une valeur relativement élevée

* L'unité légale de pression est le Pascal. $1 \text{ Pa} = 10^{-2} \text{ mb} = 0,75 \cdot 10^{-2} \text{ torr}$. Cependant, la plupart de nos mesures ont été effectuées en millibars ou en torrs. Nous utiliserons le millibar dans la suite de ce chapitre.

($< 10^{-4}$ mb). Toutefois le libre parcours moyen des molécules est tel (~ 70 cm) que le jet n'est pas détruit.

- La zone d'interaction jet-laser est parfaitement isolée de la cellule près de laquelle existe une vapeur résiduelle de molécules diffusées dans toutes les directions. L'hydrogène étant très difficile à piéger, cet arrangement limite fortement l'accumulation de l'hydrogène dans l'enceinte d'interaction.

IV.1.1. Détermination des caractéristiques de pompage

Des expériences prévisionnelles sur cellule d'hydrogène nous ont permis d'établir que le point de fonctionnement en pression d'une bonne décharge se situe dans la gamme 0,1 à 1 mb. Si on prend comme limite supérieure de pression 10^{-4} mb dans l'enceinte intermédiaire, on peut déterminer approximativement la vitesse de pompage sur cette enceinte ; il faut pour cela connaître la conductance du capillaire de la cellule.

A une pression de 0,1 mb, le libre parcours moyen pour l'hydrogène moléculaire est d'environ 0,7 mm, valeur plus faible que le diamètre du capillaire ; le régime d'écoulement est vraisemblablement intermédiaire entre l'écoulement visqueux et l'écoulement moléculaire. Dans ces conditions, le débit du capillaire est donné par la formule semi-empirique de Knudsen : [75]

$$u = \alpha_1 P_m + \alpha_2 \left[\frac{1 + c_1 P_m}{1 + c_2 P_m} \right] \quad (\text{IV.1})$$

avec

$$\alpha_1 = \frac{\pi}{8\eta} \frac{r^4}{\ell} \quad \alpha_2 = \frac{2}{3} \pi \frac{r^3}{\ell} v_m$$

$$c_1 = 2r \frac{\sqrt{\rho}}{\eta} \quad c_2 = 2,47 r \frac{\sqrt{\rho}}{\eta}$$

où P_m est la pression moyenne le long du capillaire

r et ℓ respectivement le rayon et la longueur du capillaire

η est la viscosité du gaz

v_m la vitesse thermique moyenne

ρ la densité du gaz à la pression de référence (1 Pascal)

Pour l'hydrogène moléculaire, nous avons :

$$\eta = 0,88 \cdot 10^{-5} \text{ N s m}^{-2}$$

$$v_m = 1,77 \cdot 10^3 \text{ m s}^{-1}$$

$$\rho = 8,875 \cdot 10^{-7} \text{ kg m}^{-3} \text{ à la pression de 1 Pa.}$$

La pression P_c dans la cellule étant très supérieure à la pression dans l'enceinte, on a $P_m \approx P_c/2$; la relation IV.1 s'écrit dans ces conditions : (avec $r = 0,5 \text{ mm}$ et $\ell = 30 \text{ mm}$)

$$u = 10^{-5} \left[4,65 \cdot 10^{-3} P_c + 1,545 \left(\frac{1 + 0,054 P_c}{1 + 0,066 P_c} \right) \right] \quad (\text{IV.2})$$

u s'exprime alors en $\text{m}^3 \text{ s}^{-1}$.

Si S est le débit de la pompe à diffusion (vitesse de pompage) à la pression P_e que l'on désire maintenir dans l'enceinte, lorsque l'on atteint un état stationnaire, les débits et les pressions s'équilibrent de telle sorte que :
(le gaz étant supposé parfait)

$$S P_e = u P_c$$

hydrogène moléculaire

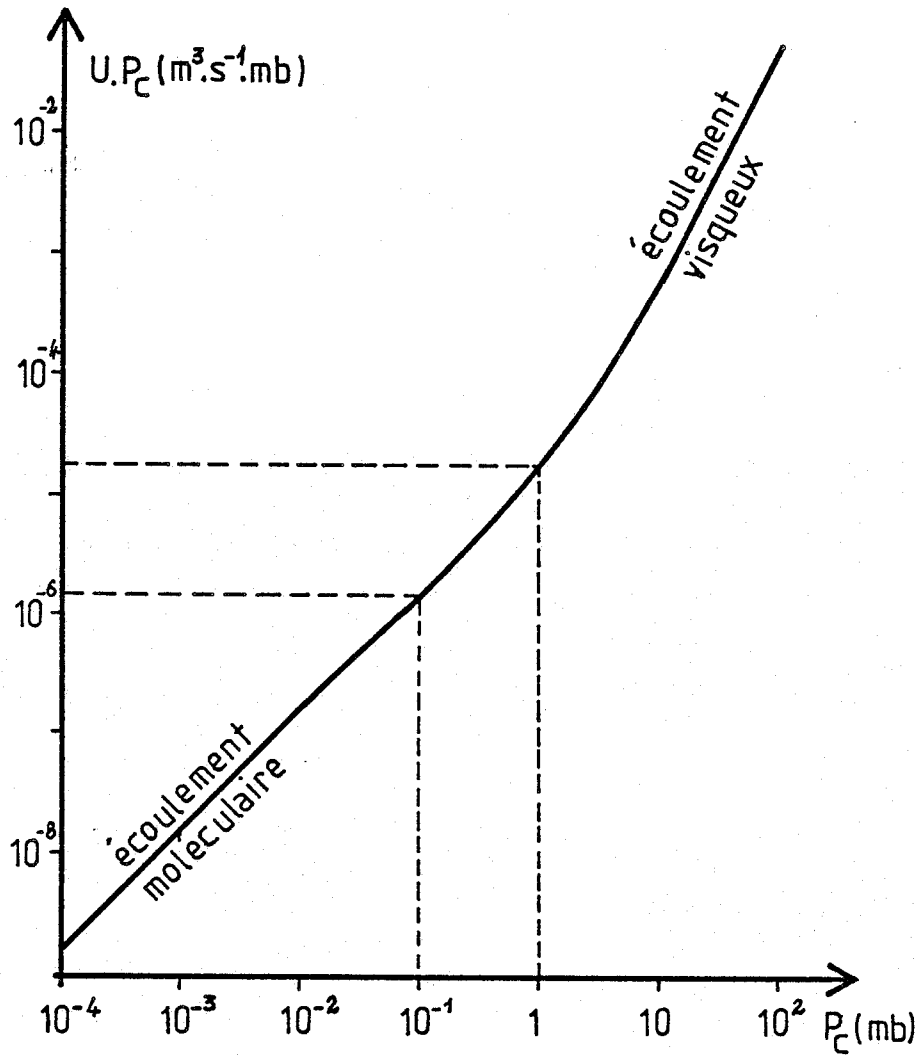


FIGURE 40

Dans ces conditions, la vitesse de pompage susceptible de maintenir une pression P_e dans l'enceinte est :

$$S = u \frac{P_c}{P_e}$$

La figure (40) donne la courbe uP_c en fonction de la pression P_c . De cette courbe on déduit que la vitesse de pompage de la pompe à diffusion doit être supérieure à 180 l/s pour pouvoir maintenir une pression de 10^{-4} mb dans l'enceinte intermédiaire avec une pression de 1 mb dans la cellule.

En conséquence, nous avons mis à ce niveau une pompe dont la vitesse de pompage nominale pour l'hydrogène est de 500 l/s (Diffstak 100/300 Edwards).

Pour le pompage de la zone d'interaction, le débit de pompage est imposé par le dégazage de l'enceinte, donc par la surface de matière exposée au vide. Dans nos conditions expérimentales, une pompe identique à la première est suffisante. Le vide limite possible avec de telles pompes associées à des joints en viton est de $5 \cdot 10^{-8}$ mb.

Les pompes primaires à palettes doivent être capables d'évacuer le gaz pompé dans l'enceinte au débit maximum des pompes à diffusion. Nous avons choisi des pompes Leybold TRIVAC D8A à deux étages d'un débit nominal de 8 m³/h adaptées à ces pompes à diffusion.

IV.1.2. Système de protection des pompes

Pendant les périodes où sont menées les expériences,

<u>INCIDENT</u>	<u>EFFET A OBTENIR</u>	<u>DETECTEUR</u>	<u>POINT D'ACTION</u>
Coupure d'électricité	Isolement des pompes secondaires	Vanne électro-pneumatiques	- Vannes pneumatiques papillon - Vannes pneumatiques primaires
Baisse de pression d'eau ou coupure d'eau	- Arrêt du chauffage des pompes secondaires - Interdiction de mise en route du chauffage	- Thermostat sur le serpentín de refroidissement (coupure à 75°C) - Détecteur de pression sur le circuit d'eau de ville	Circuit de chauffage des pompes secondaires
Remontée de la pression dans l'enceinte ou le circuit de pompage	- Isolement des pompes secondaires - Arrêt du chauffage - Arrêt des pompes primaires - Possibilité d'arrêt de tous les systèmes sous haute tension	Jauges à thermocouple	- Vannes pneumatiques papillon - Vannes pneumatiques primaires - Circuits de chauffage - Circuits de pompage - Circuits électriques

Tableau II

il est nécessaire que le pompage fonctionne jour et nuit de façon à obtenir le meilleur vide possible dans l'enceinte. C'est pour cette raison qu'un système automatique de protection des pompes doit être installé : une coupure d'eau ou une remontée de pression seraient préjudiciables pour l'huile des pompes secondaires et pour la propreté du montage s'il n'y avait pas d'intervention rapide (l'huile utilisée ici est de la SANTOVAC 5 qui est résistante aux attaques chimiques et dont la tension de vapeur est faible).

Nous n'allons pas détailler le système électromécanique complet qui permet de réaliser cette protection, mais nous donnons les points d'action de l'automatisme en fonction des causes possibles de dégradation du matériel, sur le tableau II.

A ces mesures de protection en cours de fonctionnement s'en ajoutent quelques unes à la mise en route :

- Interdiction de mise en route du système si la pression d'eau de refroidissement n'est pas suffisante.

- Interdiction de mise en route du chauffage des pompes secondaires au-dessus d'une certaine pression dans le corps de la pompe (0,2 mb).

- Interdiction d'ouverture des vannes papillon pendant le temps de chauffe des pompes secondaires (temporisation > 20 mn).

- Interdiction d'ouverture des vannes papillon lorsque la pression dans l'enceinte est supérieure à 0,2 mb.

IV.2. LA PRODUCTION ET LE CONTROLE DU JET D'HYDROGENE ATOMIQUE

IV.2.1. La cellule excitée par radio-fréquence

Parmi les méthodes possibles de production d'hydrogène atomique par dissociation de l'hydrogène moléculaire nous avons choisi la méthode de dissociation par radio-fréquence (R.F.) (cf. Chap. I). Dans certaines conditions, que nous allons préciser, cette méthode conduit à des taux de dissociation de l'ordre de 80 % et même plus [76].

Dans un premier montage, nous avons couplé l'oscillateur R.F. directement sur la cellule par l'intermédiaire d'un solénoïde enroulé autour du tube de verre. Ce dispositif simple a cependant de graves inconvénients :

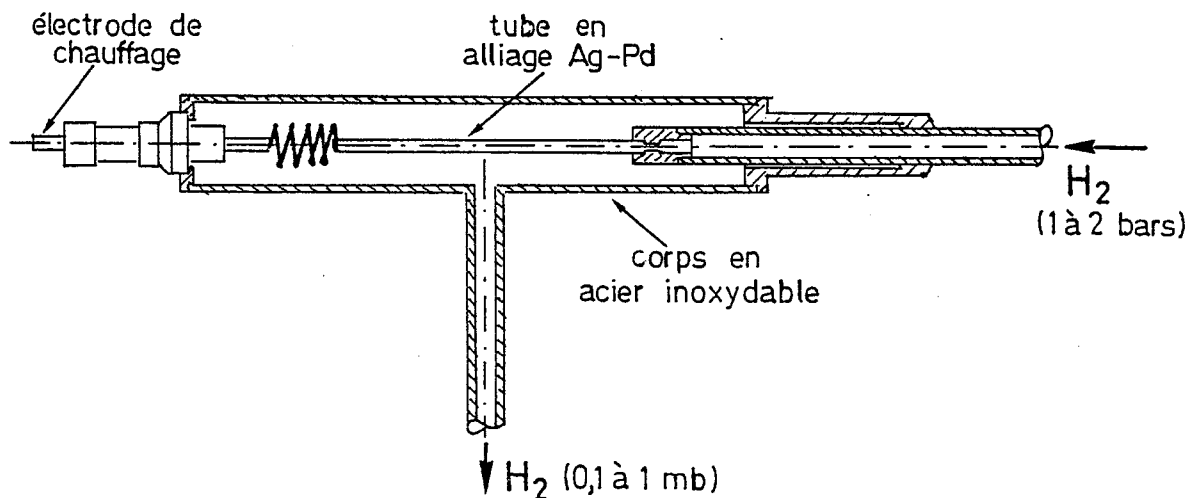
- Le couplage R.F.-décharge est extrêmement critique si bien qu'une fois la décharge en fonctionnement, la moindre variation de température ou d'impédance de la décharge arrête celle-ci et la remise en route est aléatoire.

- La cellule ne pouvant être refroidie que par ventilation, le verre se pollue très rapidement, ce qui nuit à la dissociation de l'hydrogène et à la pureté du jet.

- L'oscillateur, non blindé, rayonne la R.F. ce qui perturbe fortement les systèmes de détection.

Ces raisons nous ont conduit à envisager un autre montage qui ne présente pas ces inconvénients.

L'oscillateur blindé, muni d'un amplificateur 50 W, est couplé à la décharge à l'aide d'un résonateur accordé à la même fréquence. La décharge est refroidie à l'eau de ville (filtrée) sur toute la longueur par une circulation permanente dans une double paroi. L'hydrogène moléculaire provenant d'une bouteille commerciale (pureté N55 Air Liquide) est filtré à travers une paroi en alliage Ag-Pd. Cette paroi est en réalité un tube fin et long (\varnothing 1,6 mm, épaisseur de la paroi 0,1 mm, longueur 52 mm) fermé à une extrémité et que l'on peut chauffer par effet joule en y faisant circuler un courant sous basse tension (3 à 4 A sous 0,1 V). A la température ambiante, la paroi est complètement imperméable; lorsque l'on chauffe, les mailles de l'alliage s'écartent et la paroi devient poreuse pour l'hydrogène seulement. Ce dispositif sert de fuite réglable d'une très grande sensibilité.



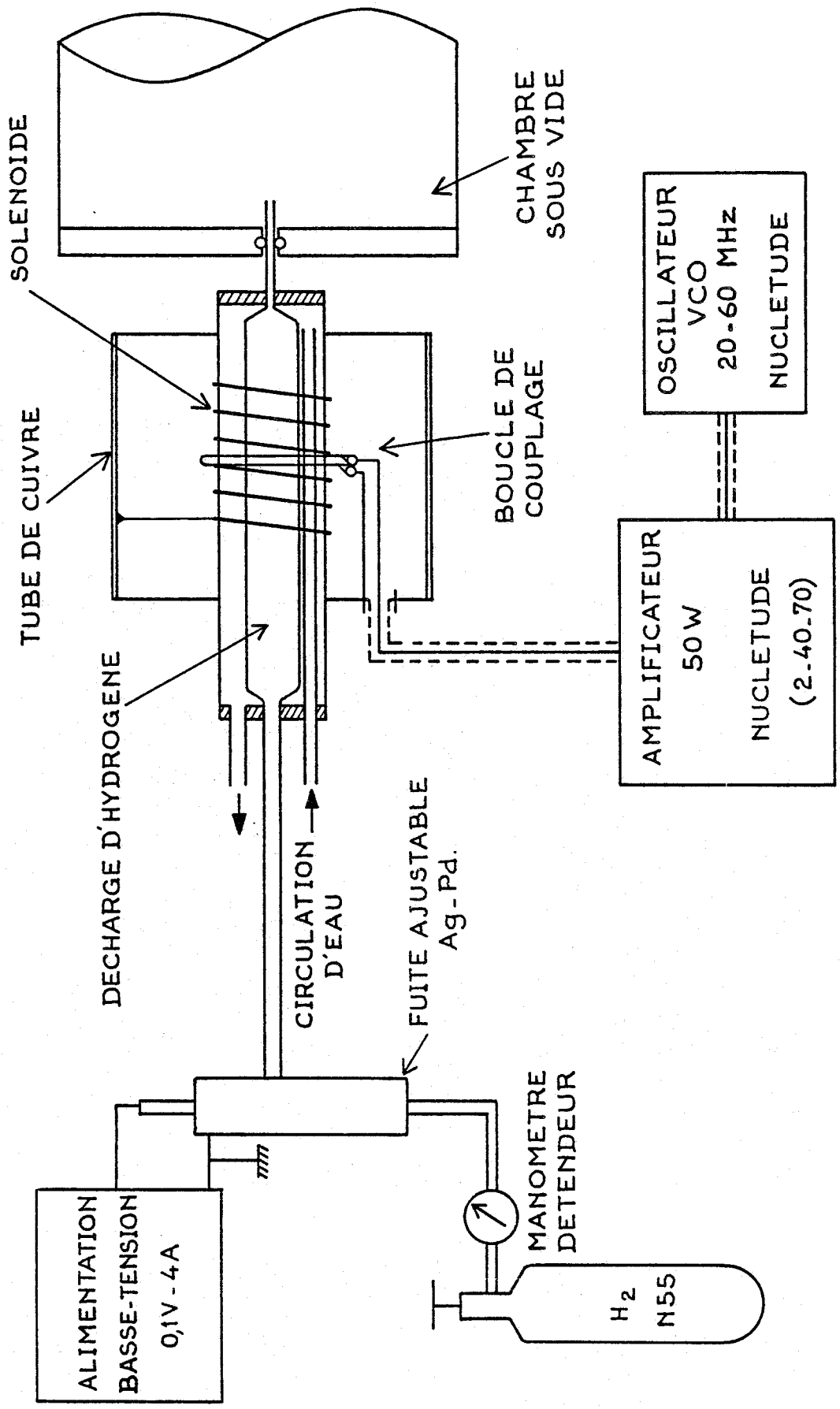
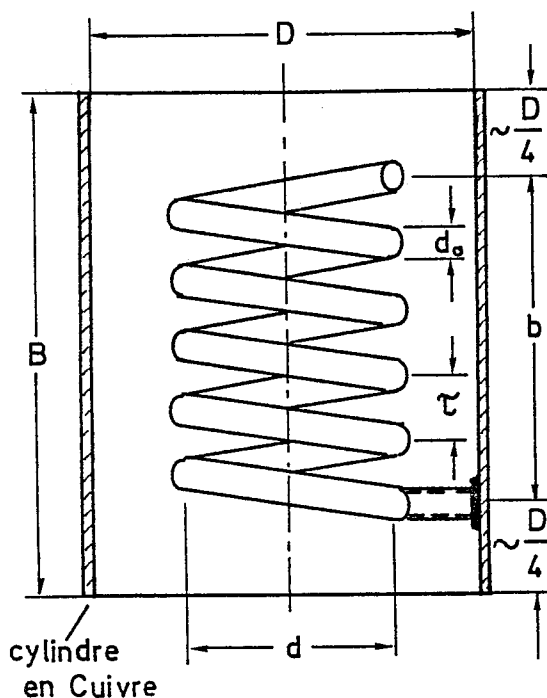


FIGURE 41

L'ensemble du système d'alimentation de la décharge d'hydrogène atomique est présenté figure (41).

En ce qui concerne le résonateur R.F., le calcul des paramètres a été mené grâce à une étude assez ancienne (1959) sur les résonateurs coaxiaux donnant un facteur de qualité Q élevé [77]. La forme du résonateur est présentée ci-dessous et les relations entre les différents paramètres pour que le système soit résonnant à une fréquence f_0 donnée dans les meilleures conditions de facteur de qualité sont les suivantes :



$$0,45 < d/D < 0,6$$

$$b/d > 1$$

$$0,4 < d_0/\tau < 0,6$$

le nombre total de tours :

$$N = 1900/f_0 D$$

où f_0 est en mégahertz et D en inches.

le pas τ du solénoïde :

$$\tau = f_0 D^2 / 2300 \text{ inches par tour}$$

L'impédance Z hors charge :

$$Z = 98000 f_0 D \text{ en ohms}$$

Le facteur de qualité Q hors charge $Q = 50 D f_0^{1/2}$

Les paramètres que nous avons utilisés et qui satisfont à ces conditions sont les suivants :

$$D = 65 \text{ mm} \quad d = 31 \text{ mm} \quad B = 91 \text{ mm}$$

$$d_0 = 1,5 \text{ mm}$$

ce qui, pour une fréquence f_0 de 30 MHz, conduit à :

$$N = 24,7 \text{ tours} \quad \tau \approx 2,3 \text{ mm}$$

$$Z \approx 1300 \ \Omega \quad Q = 700$$

En réalité nous avons obtenu un pas τ de 2,5 mm et la fréquence en charge (lorsque la décharge est en fonctionnement) est de 23,4 MHz. Le couplage entre le résonateur et l'oscillateur est réalisé par une simple boucle placée entre le tube de cuivre et le solénoïde en cuivre étamé. Le solénoïde possède une extrémité soudée sur le tube de cuivre et l'autre extrémité en l'air.

Le générateur R.F. est un oscillateur VCO (oscillateur dont la fréquence est contrôlée par une tension) dont la sortie est amplifiée dans un amplificateur de puissance 50 W, adapté pour fonctionner normalement sous une impédance de 50 Ω . Ici, l'impédance est mal adaptée (1300 Ω hors charge, vraisemblablement beaucoup moins quand la décharge est en marche) et nous avons sans doute des pertes de puissance par réflexion ; de plus, pour cette même raison, les indications de puissances fournies par l'appareil sont certainement inexactes. Ces quelques inconvénients n'empêchent pas la décharge de fonctionner dans de très bonnes conditions.

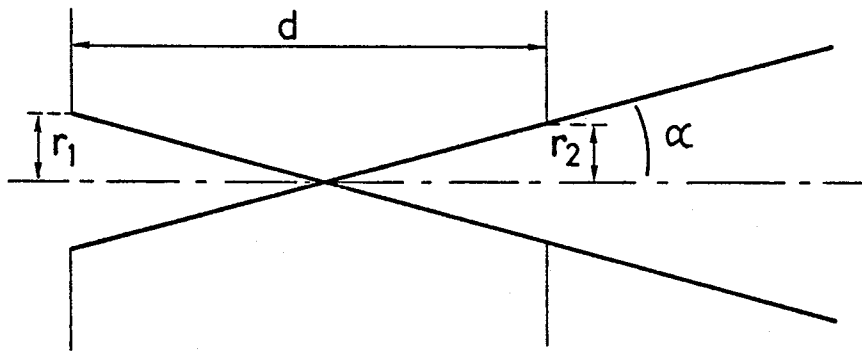
Avant de terminer ce paragraphe, il est bon de noter que le tube intérieur de la cellule en pyrex doit être parfaitement propre pour assurer un bon taux de dissociation. Après dégraissage à l'acétone et au méthanol on termine dans un bain d'acide orthophosphorique qui est réputé diminuer la recombinaison des atomes d'hydrogène [17].

IV.2.2. La collimation du jet

A) Estimation de la largeur Doppler résiduelle du jet

La collimation d'un jet est donnée par la relation :

$$c = \frac{d}{r_1 + r_2}$$



où d est la distance des deux diaphragmes délimitant le jet et r_1 et r_2 les rayons des diaphragmes.

Dans les conditions de notre expérience, le diamètre du capillaire de la cellule d'hydrogène est de 1 mm, celui du diaphragme 0,5 mm et la distance entre ces deux orifices est de 60 mm. La collimation est alors de 80.

Cependant, le capillaire ayant une longueur de 30 mm, la position du diaphragme qui lui correspond dans la définition de la collimation est plutôt placée en arrière de l'orifice de sortie. Par conséquent on peut estimer que la collimation est comprise entre 80 et 120.

La collimation permet de définir la largeur Doppler résiduelle due au jet atomique. En effet, l'angle de divergence qui correspond à l'intensité à mi-hauteur du jet est sensiblement l'angle α , faible par construction, et alors :

$$\alpha = \frac{r_1 + r_2}{d} = \frac{1}{C}$$

La largeur Doppler résiduelle est donnée par :

$$\delta v_D = \frac{v_0 v_p}{c} \sin \alpha \approx \frac{v_0}{c} \sqrt{\frac{2RT}{M}} \alpha$$

où v_0 est la fréquence de la transition, v_p la vitesse la plus probable, T la température absolue de la décharge et M la masse molaire du gaz.

Par ailleurs, la largeur Doppler pour toutes les directions est donnée par : [107]

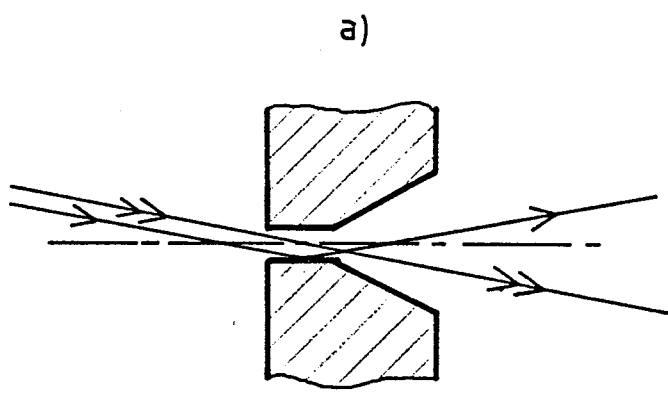
$$\Delta v_D = \frac{2v_0}{c} \sqrt{\frac{2RT \ln 2}{M}}$$

Par conséquent la largeur Doppler résiduelle et la collimation sont reliées par :

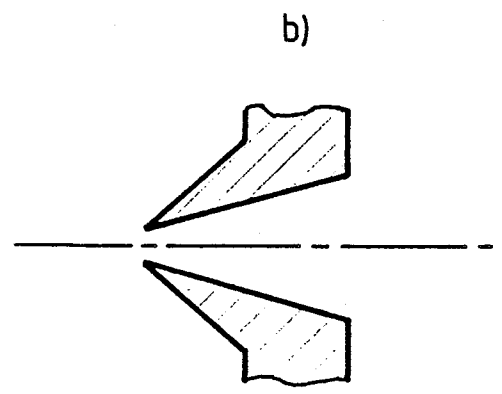
$$\delta v_D = \frac{\Delta v_D}{2\sqrt{\ln 2} C}$$

Dans le cas de l'hydrogène atomique $\Delta v_D \approx 35$ GHz pour une température de 400 K. Etant donnée la collimation du jet, la largeur Doppler que nous pouvons attendre est :

$$210 < \Delta v_D < 315 \text{ MHz}$$



diaphragme
tubulaire



diaphragme
"écorceur"

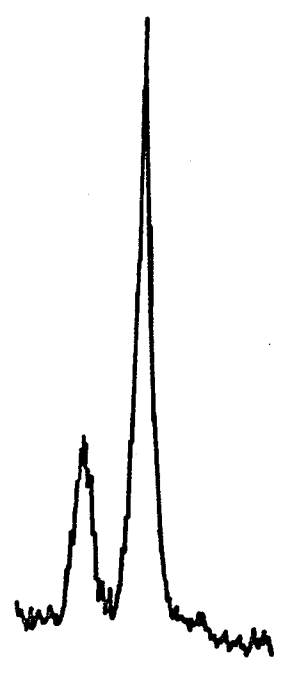
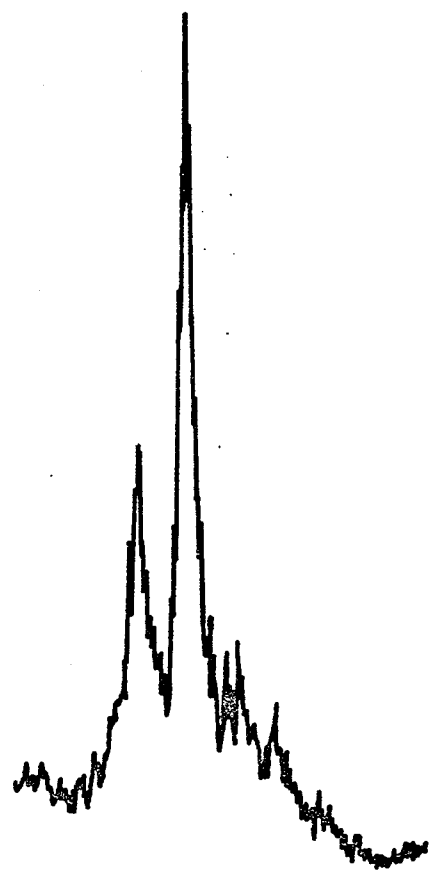


FIGURE 42

B) Influence de la forme du diaphragme de collimation sur le profil des raies

Les premiers enregistrements de la transition Lyman α à haute résolution ont montré une forte dissymétrie dans le pied des raies qui ne pouvait être due qu'à une diffusion d'atomes d'hydrogène répartie dissymétriquement par rapport au jet. Nous avons attribué ce phénomène à la forme du diaphragme de collimation placé entre la chambre intermédiaire et la chambre d'interaction.

La figure (42a) montre la forme tubulaire du premier diaphragme. L'indicatrice d'émission de la source d'hydrogène est certainement très pointue et si celle-ci n'est pas parfaitement alignée sur l'axe du diaphragme, il en résulte une diffusion des atomes préférentiellement d'un côté du jet ; l'effet est mis en évidence sur un spectre réalisé dans ces conditions.

La solution a consisté à utiliser un diaphragme "écorceur" (figure 42b) généralement employé avec des jets supersoniques pour éviter les accumulations de gaz au niveau du trou [78]. Dans notre cas, les arêtes tranchantes du diaphragme limitent les diffusions et réflexions sur les parois et le spectre enregistré est alors symétrique.

IV.2.3. Le dispositif de contrôle du jet

Ce dispositif, qui n'est pas à demeure sur le montage, nous a permis de caractériser la stabilité de la production d'hydrogène atomique et son évolution en fonction des différents paramètres : pression dans la cellule, puissance R.F., fréquence R.F.

A) Le montage de détection d'hydrogène atomique

La détection de l'hydrogène atomique est réalisée par un détecteur thermique à oxydes métalliques (oxyde de nickel, oxyde de manganèse et oxyde de cobalt) commercialisé par Thermometrics [79]. La surface du détecteur est un film d'oxyde de 1×1 mm de côté et de $50 \mu\text{m}$ d'épaisseur connecté à l'aide de fils de platine dans un boîtier standard T0-5. Cette petite plaquette a été disposée dans l'axe du jet à environ 50 cm de la source.

Le détecteur est insensible aussi bien à l'hydrogène moléculaire qu'aux rayonnements ultraviolet, visible et infrarouge. Le flux d'hydrogène est mesuré à partir du changement de conductivité du matériau qui intervient lorsque l'hydrogène est combiné chimiquement en surface. Le temps de réponse est de l'ordre de 2 ms et le signal minimum détectable est d'environ 10^9 atomes d'hydrogène par mm^2 et par seconde.

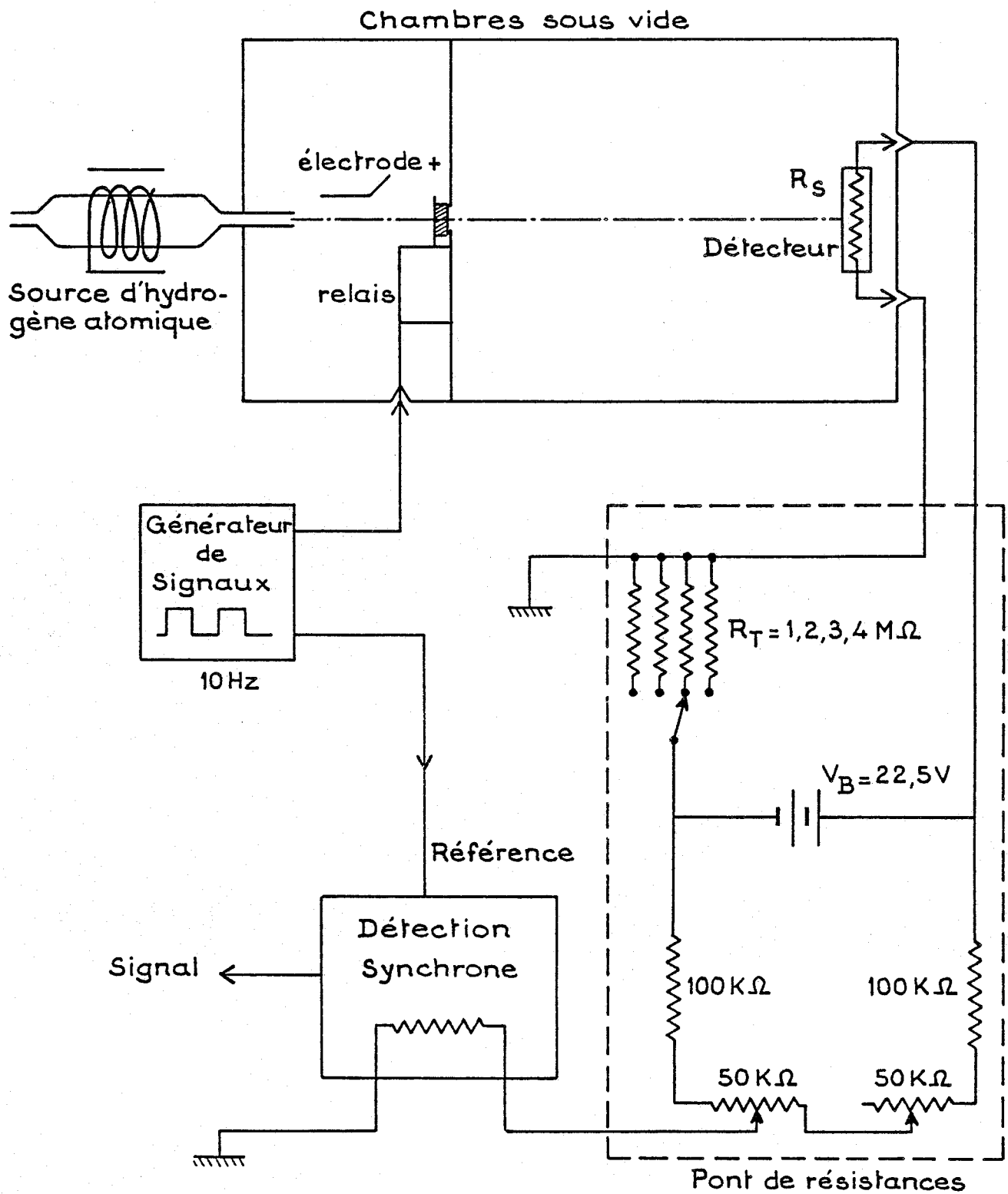


FIGURE 43

Comme le coefficient de température de la résistance du film d'oxyde est important ($\sim 4 \cdot 10^{-2} \text{ K}^{-1}$) il faut, pour pouvoir détecter un signal de très faible amplitude, pouvoir s'affranchir des variations de résistance. Ceci est obtenu en modulant le jet d'hydrogène et en détectant le signal à travers un pont de résistances puis une détection synchrone. Le schéma du montage, figure (43), indique les différentes valeurs des résistances employées ; celle du détecteur est d'environ $1 \text{ M}\Omega$. La valeur de la variation de tension aux bornes du pont en fonction de la variation de résistance du détecteur est donnée par :

$$\Delta V_s = [R_T V_B (R_s + R_T)^2] \Delta R_s$$

On annule V_s en agissant sur les potentiomètres de $50 \text{ k}\Omega$ et $5 \text{ k}\Omega$ qui assurent un ajustement grossier et fin. On a intérêt à limiter le courant dans le détecteur afin de ne pas l'échauffer en donnant à V_B une valeur pas trop importante. La modulation du jet est assurée par un relais électromécanique sur lequel est monté un petit galet en téflon qui glisse sur le diaphragme. Les signaux de modulation ont une forme carrée ; le temps de montée pour l'ouverture du jet est de 2 ms et la fréquence de 10 Hz .

Le signal détecté a une amplitude d'environ $10 \text{ }\mu\text{V}$ ce qui est très faible, mais le rapport signal sur bruit est meilleur que 100 pour une pression de $0,5 \text{ mb}$ dans la cellule. Une électrode a été placée à la sortie du capillaire pour éliminer les ions.

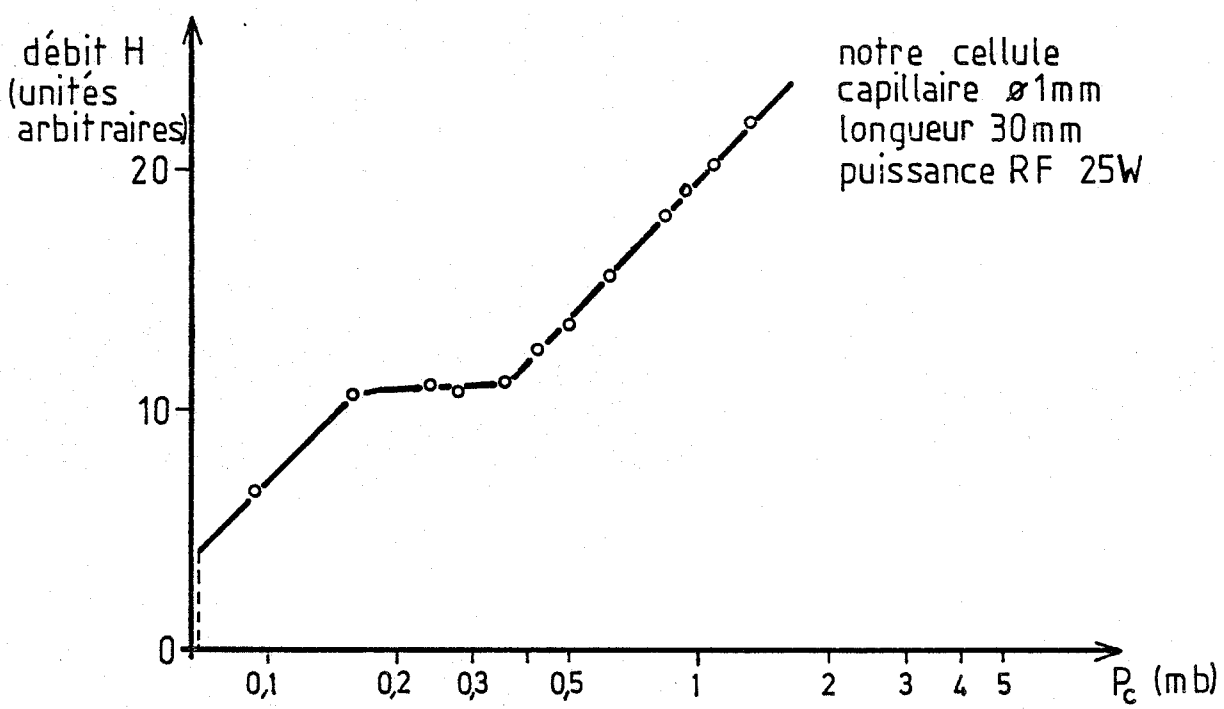
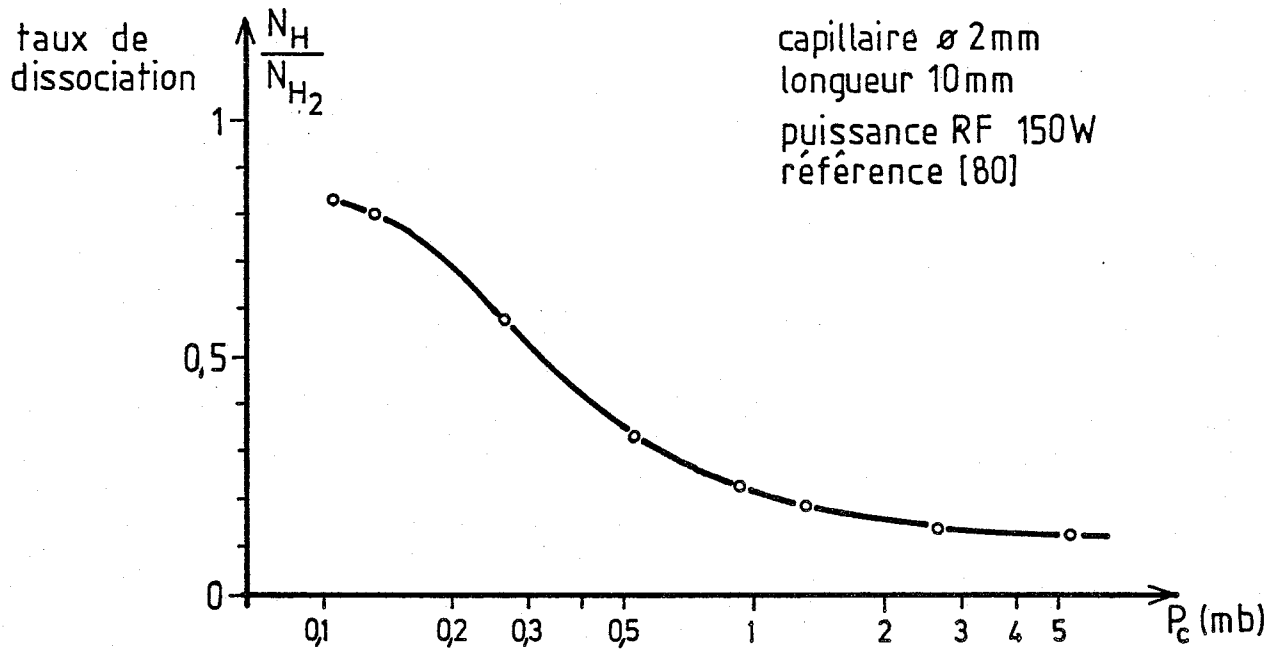


FIGURE 44

B) Détermination des caractéristiques de fonctionnement de la source d'hydrogène atomique

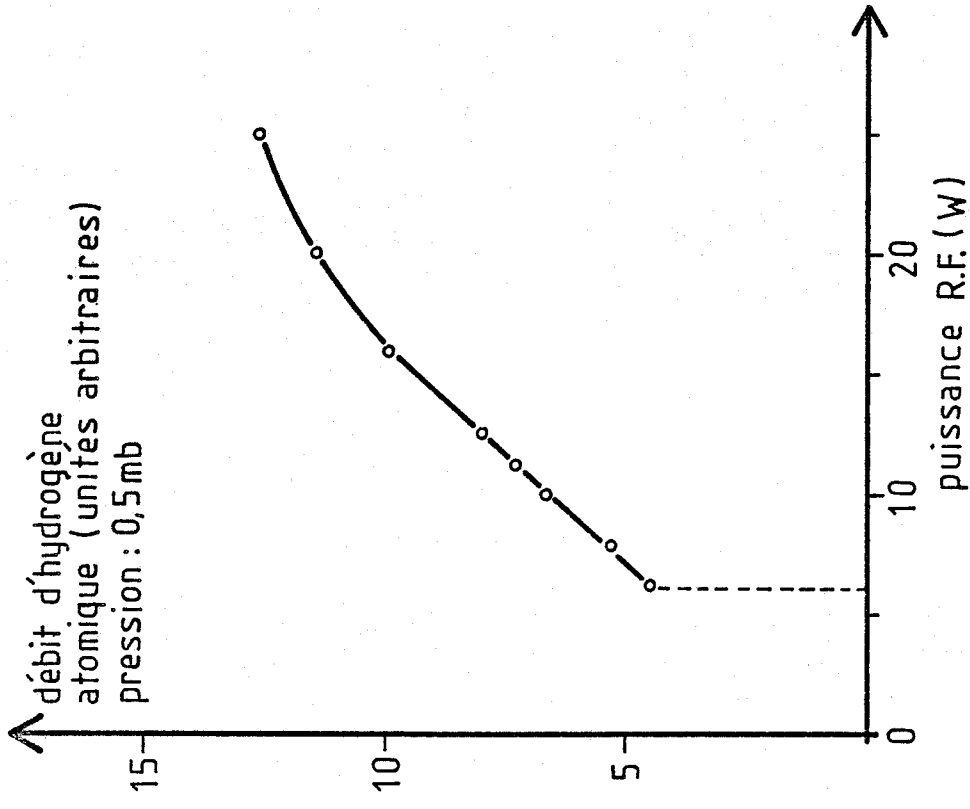
Ce montage nous a permis d'établir la courbe du débit d'hydrogène atomique en fonction de la pression dans la cellule. On note trois régimes différents : (figure 44b)

α) à basse pression, $P_c < 0,15$ mb, le débit d'hydrogène croît rapidement

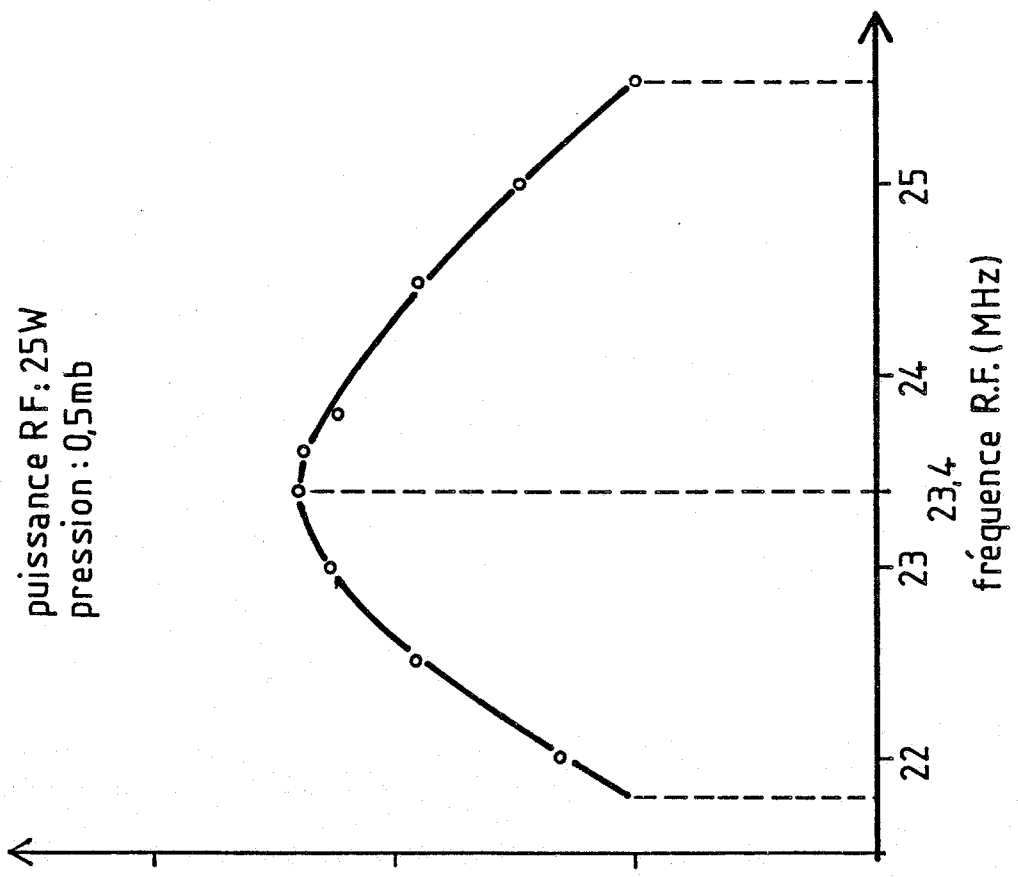
β) entre 0,15 et 0,4 mb, le débit passe par un palier

γ) pour $P_c > 0,4$ mb, le débit croît de nouveau.

En réalité, ces trois régimes du débit doivent correspondre à trois régimes différents du taux de dissociation de l'hydrogène moléculaire. Dans le régime α), le taux de dissociation doit être maximum (supérieur à 0,8 pour ce genre de cellule). Dans le régime β), qui se situe dans une bande étroite de pression, le taux de dissociation chute rapidement. Ce phénomène, déjà noté par ailleurs [80], peut s'expliquer de la façon suivante : la décharge d'hydrogène s'arrête juste avant le capillaire si bien que les recombinaisons se font en majorité à l'intérieur même du capillaire. La gamme de pression 0,15 à 0,4 mb correspond justement à la gamme où le libre parcours moyen de l'hydrogène atomique devient de l'ordre de grandeur du diamètre du capillaire. Pour les plus faibles pressions, le faible taux de recombinaison serait dû essentiellement à des chocs atome-paroi, mais lorsque la pression augmente on peut penser que ce sont



a)



b)

FIGURE 45

P=25W
pression dans la cellule: 0,5 mb

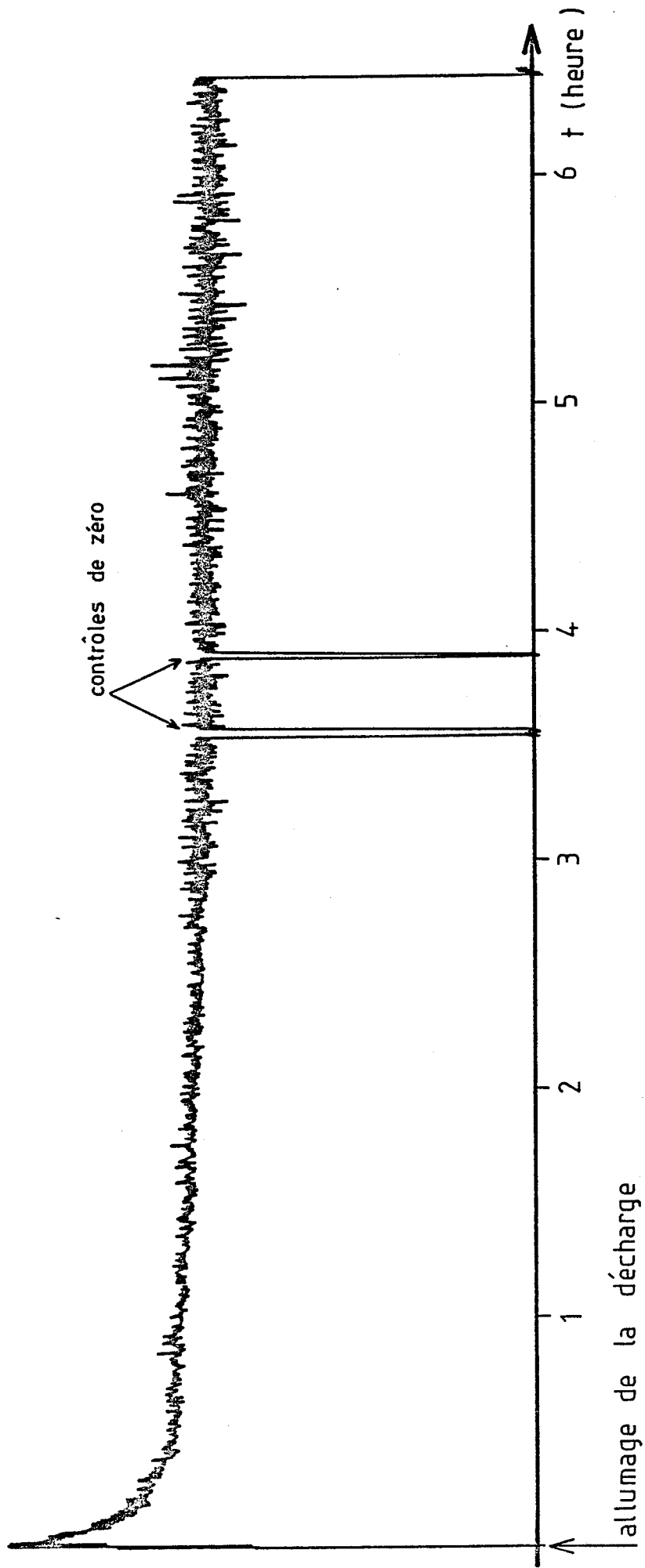


FIGURE 46 - stabilité du jet d'hydrogène atomique

les chocs atome-atome ou atome-molécule qui sont responsables d'un taux de recombinaison plus important. Ce taux de recombinaison croît bien entendu lorsque la pression augmente encore.

A titre de comparaison, nous avons reproduit une courbe (fig. 44a) donnant le taux de dissociation de l'hydrogène en fonction de la pression dans la cellule, dans des conditions voisines des nôtres. La chute du taux de dissociation s'effectue dans la même zone de pression que dans notre cas.

Sur la figure (45a), on a tracé la courbe donnant le débit d'hydrogène en fonction de la puissance R.F. appliquée à la décharge. Compte-tenu du gain de l'amplificateur et des caractéristiques du circuit, la puissance maximum appliquée à la décharge est d'environ 25 W. A la pression choisie ici, le taux de dissociation est certainement très inférieur à 1 puisque la variation du débit est d'abord linéaire puis sature légèrement lorsque la puissance injectée dépasse 16 W.

La figure (45b) indique que la plage de fréquences R.F. assurant la stabilité de la décharge s'étend sur environ 3,5 MHz autour de la fréquence de résonance.

Enfin sur la figure (46) est reproduit un enregistrement de plusieurs heures pour montrer la stabilité à long terme de cette source. Après la période de mise en route simultanée de la décharge et du flux d'hydrogène (environ 1/2 heure pendant laquelle le filtre Ag-Pd prend son régime d'équilibre) la source a un débit stable avec une légère décroissance de l'ordre de 10 % sur 5 h 30 mn.

C) Evaluation de l'intensité du jet d'hydrogène

L'intensité d'un jet atomique issu d'une source de surface A_s (cm^2) à la pression p (mm de mercure) au niveau d'un détecteur de surface A_d (cm^2) placé à une distance l (cm) de la source est donnée par : [81]

$$I = 1,118 \cdot 10^{22} \frac{p A_s A_d}{l^2 \sqrt{MT}} \quad (\text{molécules} \cdot \text{s}^{-1})$$

où T est la température absolue et M la masse molaire des molécules de la source.

De plus, le capillaire de la source étant de grande longueur ($d = 30$ mm) devant son rayon ($r = 0,5$ mm), le nombre de molécules issues de la source doit être pondéré par le facteur

$$\tau = \frac{8r}{3d} \approx 4,4 \cdot 10^{-2}$$

En ce qui nous concerne, l'intensité du jet, limité dans la zone d'interaction à une section voisine de celle du diaphragme écorceur ($\varnothing \approx 0,5$ mm) est donc d'environ $2 \cdot 10^{12}$ atomes $\cdot \text{s}^{-1}$ (à $l \approx 10$ cm) à une pression de 0,5 torr dans la cellule.

Compte-tenu de la vitesse thermique des atomes ($v_{th} \approx 2,7$ km $\cdot \text{s}^{-1}$) le nombre d'atomes dans le volume d'interaction (un cylindre de diamètre 0,5 mm et de longueur 1 mm) est d'environ $7,5 \cdot 10^5$ (équivalent à une densité de $4 \cdot 10^9$ atomes par cm^3).

Au niveau du détecteur (situé à 50 cm de la source) de surface 1 mm^2 , l'intensité du jet n'est plus que :

4.10^{11} atomes. s^{-1} , l'angle solide correspondant au détecteur étant plus petit que celui du diaphragme.

Ces valeurs sont cohérentes avec la valeur du rapport signal sur bruit (~ 100) et du minimum détectable indiqué sur la référence [79] ($\sim 10^9$ atomes. $mm^{-2}.s^{-1}$).

L'ordre de grandeur de la densité d'atomes dans la zone d'interaction avec le laser doit permettre une détection aisée des niveaux de Rydberg. Si on sature la transition $1s \rightarrow 2p$ de l'hydrogène atomique avec le laser U.V.L. du premier étage, près de 50 % des atomes sont portés dans le niveau excité $2p$. Avec une méthode de détection par ionisation par champ électrique on collecte ensuite pratiquement tous les atomes portés sur un niveau de Rydberg par le deuxième étage d'excitation (une puissance modeste, de l'ordre du kilowatt crête, suffit sur cet étage pour saturer une transition $2p \rightarrow n$, où n est de l'ordre de 30 à 40).

Nous allons exposer au chapitre suivant les résultats expérimentaux que nous avons obtenus à l'aide du montage laser décrit aux chapitres II et III et du jet atomique d'hydrogène décrit dans ce chapitre.

C H A P I T R E V

RESULTATS EXPERIMENTAUX

ETUDE DE L'ATOME D'HYDROGENE

V. RESULTATS EXPERIMENTAUX - ETUDE DE L'ATOME D'HYDROGENE

V.1. ETUDE DU NIVEAU $n=2$ DE L'HYDROGENE EN L'ABSENCE DE CHAMP EXTERIEUR

En l'absence de champ extérieur, le hamiltonien H_0 reflétant l'état interne de l'atome d'hydrogène peut être mis sous la forme suivante : [82]

$$H_0 = \frac{P^2}{2\mu} + V(R) \quad (V.1)$$

où $V(R) = -\frac{e^2}{4\pi\epsilon_0 R}$ est l'énergie potentielle de l'électron dans le potentiel coulombien du noyau et μ la masse réduite de l'électron. P est l'opérateur impulsion de la masse μ dans le repère lié au centre de masse de l'atome. La résolution de l'équation de Schrödinger associée à H_0

$$H_0 \psi = E \psi$$

permet, en particulier, de déterminer les valeurs propres de H_0 qui sont les énergies possibles de l'électron dans le champ coulombien du noyau (l'origine des énergies étant par conséquent fixée à l'énergie d'ionisation). Ces énergies quantifiées sont données par :

$$E_n = -\frac{1}{2} \frac{\mu c^2 \alpha^2}{n^2} = -\frac{Ry}{n^2} \quad (n=1,2,3,\dots,\infty) \quad (V.2)$$

où $\alpha = \frac{e^2}{4\pi\epsilon_0 \hbar c} \approx \frac{1}{137}$ est la constante de structure fine et Ry est la constante de Rydberg pour l'hydrogène (Ry = 109677,6 cm⁻¹).

Dans ce modèle simple, tous les états de même nombre quantique principal n ont donc même énergie. Si on néglige les effets de spin, le nombre quantique orbital ℓ prend toutes les valeurs entières entre 0 et $(n-1)$ et le nombre quantique magnétique m_ℓ lié au moment orbital, toutes les valeurs entières entre $(-\ell)$ et $(+\ell)$. La dégénérescence d'un niveau de nombre quantique n est donc n^2 .

Cependant, l'expression (V.1) n'est qu'approchée, elle ne tient pas compte, entre autres, des termes traduisant les effets relativistes et les effets magnétiques dus au spin de l'électron.

V.1.1. Structure fine

Compte-tenu de la grande précision que permettent depuis longtemps les méthodes de spectroscopie atomique, on n'a pas pu en rester au modèle simple, non relativiste, de Bohr ; il a fallu évaluer la contribution des corrections à apporter à H_0 pour expliquer l'observation de la structure fine.

Contrairement aux autres atomes (alcalins en particulier, qui sont par ailleurs très comparables à l'hydrogène),

la structure fine de l'hydrogène ne peut évidemment pas s'expliquer par les interactions électrostatiques des électrons entre eux.

La méthode rigoureuse pour obtenir la structure fine des niveaux d'énergie de l'atome d'hydrogène, c'est de résoudre l'équation de Dirac pour un électron placé dans le potentiel coulombien du proton. La résolution peut se faire exactement et prend en compte le spin de l'électron de même que les effets relativistes. L'expression exacte de l'énergie d'un niveau caractérisé par les nombres quantiques n , ℓ , s , J est la suivante : (où $\vec{J} = \vec{L} + \vec{S}$, $J = \ell \pm 1/2$).

$$E_{n,J} = m_e c^2 \left[1 + \alpha^2 \left(n - J - \frac{1}{2} + \sqrt{\left(J + \frac{1}{2} \right)^2 - \alpha^2} \right)^{-2} \right]^{-1/2} \quad (\text{V.3})$$

On constate que l'énergie ne dépend que de n et J et non de ℓ . (L'apparition de la masse de l'électron m_e au lieu de la masse réduite μ vient du fait que l'on considère ici un proton infiniment lourd, ce qui modifie peu les écarts d'énergie).

Cette expression est issue d'un calcul compliqué et il est plus intéressant de se placer d'un point de vue perturbatif pour mettre en évidence les interactions donnant naissance à la structure fine.

Soit H l'hamiltonien complet de l'atome ; l'équation de Dirac permet de mettre H sous la forme :

$$H = m_e c^2 + H_0 + H_1 \quad (\text{V.4})$$

où H_0 a la même forme que dans (V.1) et H_1 représente les autres termes négligés jusqu'ici.

L'atome d'hydrogène est un système faiblement relativiste ($\alpha = \frac{v}{c} \approx \frac{1}{137} \ll 1$, où v est la vitesse de l'électron sur la première orbite de Bohr) ; cependant les effets relativistes ne sont pas négligeables si l'on fait de la spectroscopie à haute résolution, en particulier pour les états s pour lesquels la probabilité de présence de l'électron au niveau du noyau n'est pas nulle. Ils sont encore accentués si le nombre quantique n est petit.

Dans le domaine faiblement relativiste, le terme H_1 est constitué de trois termes correctifs principaux, d'ordre de grandeur comparable :

$$\begin{aligned}
 H = m_e c^2 + \underbrace{\frac{p^2}{2m_e} + V(R)}_{H_0} - \underbrace{\frac{p^4}{8m_e^3 c^2}}_{H_{EC}} + \underbrace{\frac{1}{2m_e^2 c^2} \cdot \frac{1}{R} \cdot \frac{dV(R)}{dR}}_{H_{SO}} \text{ L.S} \\
 + \underbrace{\frac{\hbar^2}{8m_e^2 c^2} \Delta V(R)}_{H_D} + \dots \quad (V.5)
 \end{aligned}$$

Le terme H_{EC} représente simplement la correction à l'énergie due à la variation relativiste de la masse avec la vitesse. Le terme H_{SO} explicite le couplage spin-orbite : interaction entre le moment magnétique intrinsèque de l'électron et le champ magnétique lié au déplacement de l'électron dans le champ électrostatique du proton.

Le terme H_D , appelé terme de Darwin, qui apparaît dans le développement de H_1 indique que l'électron est sensible aux variations du champ dans son voisinage, sur un domaine dont

l'extension est peu différente de la longueur d'onde de Compton $\hbar/m_e c$ de l'électron.

L'évaluation de la matrice représentant l'hamiltonien de structure fine H_1 dans la multiplicité $n = 2$ se fait ensuite très simplement. On peut remarquer d'abord que H_1 commute avec L^2 et donc n'a pas d'élément de matrice entre un état $2s$ et un état $2p$. Les matrices représentant H_{EC} , H_{SO} et H_D peuvent être déterminées séparément dans les sous-espaces $2s$ et $2p$. Le tableau ci-dessous résume les résultats obtenus pour les niveaux $2s_{1/2}$, $2p_{1/2}$, $2p_{3/2}$. Les quantités indiquées sont les écarts à l'énergie non perturbée donnée par

$$E_2 = - \frac{\mu c^2 \alpha^2}{8}$$

pour le niveau $n = 2$.

	$\langle H_{EC} \rangle$	$\langle H_D \rangle$	$\langle H_{SO} \rangle$	Déplacement par rapport à E_2
$2s_{1/2}$	$-\frac{13}{128} m_e c^2 \alpha^4$	$\frac{1}{16} m_e c^2 \alpha^4$	0	$-\frac{5}{128} m_e c^2 \alpha^4$
$2p_{1/2}$	$-\frac{7}{384} m_e c^2 \alpha^4$	0	$-\frac{1}{48} m_e c^2 \alpha^4$	$-\frac{5}{128} m_e c^2 \alpha^4$
$2p_{3/2}$	$-\frac{7}{384} m_e c^2 \alpha^4$	0	$\frac{1}{96} m_e c^2 \alpha^4$	$-\frac{1}{128} m_e c^2 \alpha^4$

On remarque donc que sous l'action de l'hamiltonien de perturbation H_1 , le niveau $n = 2$ se scinde en trois niveaux dont deux ($2s_{1/2}$ et $2p_{1/2}$) restent confondus. L'écart existant entre les niveaux $2p_{1/2}$ et $2p_{3/2}$ et appelé "**structure fine**" est numériquement égal à :

$$E_{2p_{3/2}} - E_{2p_{1/2}} = \frac{1}{32} m_e c^2 \alpha^4 \approx 0,366 \text{ cm}^{-1}$$

Seul le couplage spin-orbite est responsable de cet écart puisque les termes H_{EC} et H_D déplacent en bloc le niveau $2p$.

Cependant, le fait le plus intéressant à noter, c'est que même en résolvant exactement l'équation de Dirac les niveaux de même J ont même énergie (les états $2s_{1/2}$ et $2p_{1/2}$ restent dégénérés) tandis que les expériences de Lamb et Retherford montrent qu'il existe un écart d'environ $0,035 \text{ cm}^{-1}$ entre les énergies de ces deux niveaux [83]. La description donnée par l'équation de Dirac n'est donc pas entièrement satisfaisante.

V.1.2. Le déplacement de Lamb

Il a fallu attendre les développements de l'électrodynamique quantique pour avoir une excellente description de ce phénomène et on peut même dire que c'est celui-ci qui les a stimulés.

Sans entrer dans les détails, disons que même en l'absence de tout photon incident, il existe dans l'espace vide un champ électromagnétique fluctuant lié au caractère quantique de ce champ. L'interaction du rayonnement électromagnétique du vide avec l'électron lié à l'atome peut être considérée comme une modification de l'énergie potentielle effective de cet électron. Ceci conduit à effectuer des corrections (dites corrections radiatives) dont le terme le plus important est, pour l'hydrogène :

$$\Delta E \approx \frac{\alpha^5 m_e c^2}{2\pi n^3}$$

le coefficient de proportionnalité dépendant du nombre quantique l [84].

Cette correction a pour effet de lever la dégénérescence entre les niveaux de même J , $2s_{1/2}$ et $2p_{1/2}$: le niveau $2s_{1/2}$ est élevé par rapport au niveau $2p_{1/2}$ d'une quantité qui vaut

$$S = 1057,6 \text{ MHz.}$$

Sur les niveaux plus élevés, cette correction diminue en $1/n^3$. Les valeurs expérimentales sont en excellent accord avec la théorie, ce qui constitue au moins un des tests décisifs de l'électrodynamique quantique.

V.1.3. La structure hyperfine

Nous avons passé sous silence, dans tout ce qui précède, les interactions magnétiques entre le proton et l'électron.

Le proton, de spin $I = 1/2$, possède un moment magnétique

$$M_I = \frac{g_p \mu_n I}{\hbar}$$

où μ_n est le magnéton de Bohr nucléaire ($\mu_n = \frac{e\hbar}{2m_p}$) et le facteur g_p valant pour le proton $g_p \approx 5,585$.

Par suite de la présence de la masse m_p du proton au dénominateur de l'expression de μ_n , celui-ci est environ 2000 fois

plus petit que le magnéton de Bohr ; il s'ensuit que les interactions auxquelles donne lieu le spin du proton sont très faibles par rapport à celles qui ont été envisagées pour l'instant.

Encore une fois on peut rendre compte de ces interactions en ajoutant à l'hamiltonien H (V.4) un terme perturbateur H_{hf} que nous allons expliciter.

En introduisant dans l'équation de Schrödinger non relativiste le potentiel vecteur correspondant au moment magnétique M_I , on trouve qu'il faut ajouter l'expression :

$$H_{hf} = - \frac{\mu_0}{4\pi} \left\{ \underbrace{\frac{q}{m_e R^3} L \cdot M_I}_{(1)} + \frac{1}{R^3} \underbrace{\left[3(M_S \cdot n)(M_I \cdot n) - M_S \cdot M_I \right]}_{(2)} + \frac{8\pi}{3} \underbrace{M_S M_I \delta(R)}_{(3)} \right\} \quad (V.6)$$

M_S est le moment magnétique de spin de l'électron.

n est le vecteur unitaire porté par la droite reliant le proton et l'électron.

Le terme (1) représente l'interaction entre le moment magnétique du proton et le champ magnétique créé au niveau du proton par le déplacement de l'électron.

Le terme (2) représente l'interaction dipôle-dipôle entre les moments magnétiques de l'électron et du proton.

Le terme (3) ou "**terme de contact**" rend compte du fait que le proton n'est pas ponctuel et décrit l'interaction du moment magnétique de spin de l'électron avec le champ magnétique qui existe à l'intérieur du proton.

Il est clair que les interactions magnétiques entre proton et électron doivent être beaucoup plus sensibles lorsque la charge électronique est proche du noyau, c'est-à-dire pour le niveau $n = 1$. Nous allons donc déterminer la structure hyperfine pour ce niveau. Remarquons, tout d'abord que pour le niveau $1s$, il n'y a pas de dégénérescence orbitale ($l = 0$), mais en considérant les spins de l'électron et du proton on voit que la dégénérescence de ce niveau est 4. Par ailleurs, le terme de structure fine H_1 ne lève pas cette dégénérescence, il se contente de déplacer en bloc le niveau d'une quantité égale à : $-\frac{1}{8}m_e c^2 \alpha^4$. Le niveau $1s$ n'a donc pas de structure fine.

Pour lever, au moins partiellement, la dégénérescence, il faut étudier l'effet du terme H_{hf} .

Le terme (1) apporte une contribution nulle puisqu'il ne prend en compte que des éléments de matrice angulaires ($l=0$). Le terme (2) s'avère être nul également à cause de la symétrie sphérique de l'état $1s$.

Seul le terme de contact (3) va donner une contribution non nulle. On peut séparer les parties orbitales et de spin de l'élément de matrice de ce terme et le problème se réduit à une interaction de deux spins $1/2$ I et S de la forme :

$$A I \cdot S \quad (V.7)$$

où A est une constante valant :

$$A = \frac{4}{3} g_p \frac{m_e}{m_p} \left(1 + \frac{m_e}{m_p} \right)^{-3} \frac{m_e c^2 \alpha^4}{\hbar^2}$$

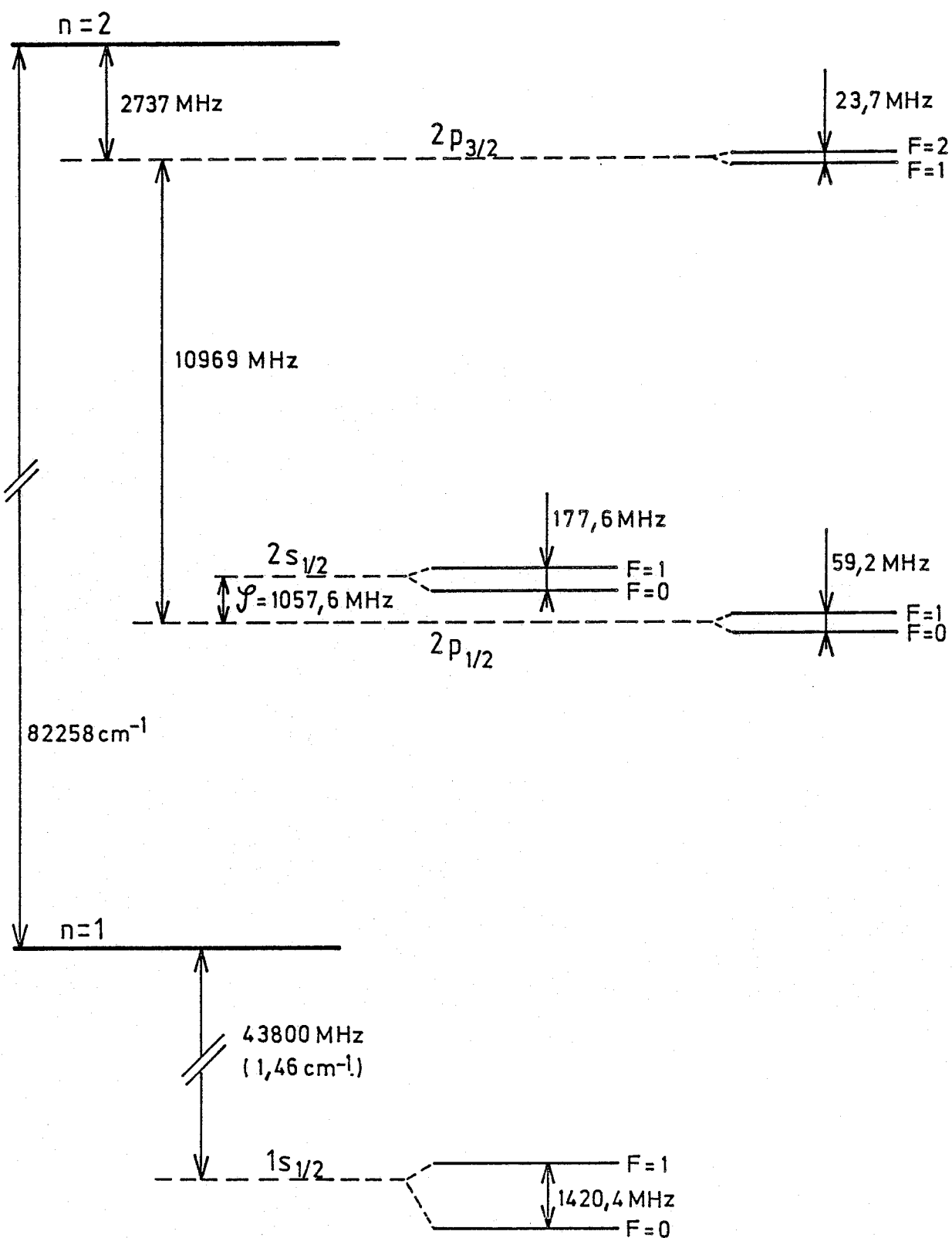


FIGURE 47

Soit $F = S+I$ le moment cinétique total (le moment cinétique orbital L est nul), on peut utiliser pour représenter commodément l'opérateur (V.7) la base $|s=\frac{1}{2}; I=\frac{1}{2}; F; m_F\rangle$, F ne pouvant donc prendre que deux valeurs $F = 0$ et $F = 1$. La dégénérescence d'ordre 4 du niveau $1s$ est alors en partie levée le niveau $F = 1$ est triplement dégénéré et son énergie est décalée par rapport à l'énergie du niveau non perturbé d'une valeur $+\frac{A\hbar^2}{4}$. Le niveau $F = 0$ quant à lui n'est plus dégénéré et son décalage est $-\frac{3A\hbar^2}{4}$. La structure hyperfine de l'état fondamental, donnée par l'écart entre les niveaux $F = 0$ et $F = 1$, vaut environ 1420 MHz (correspondant à $A\hbar^2$). Expérimentalement, la transition hyperfine $F=0 \leftrightarrow F=1$ est la mieux connue de toutes les grandeurs physiques avec 12 chiffres significatifs et ceci grâce à l'emploi du maser à hydrogène. C'est la raie de longueur d'onde 21 cm bien connue en radioastronomie.

Un calcul du même genre pourrait être fait pour chacun des niveaux $2s_{1/2}$, $2p_{1/2}$ et $2p_{3/2}$. Ils possèdent une structure hyperfine beaucoup plus petite que le niveau $1s$. Chaque niveau se scinde en deux avec les valeurs $F = 0$ et $F = 1$ lorsque $J = 1/2$, $F = 1$ et $F = 2$ lorsque $J = 3/2$.

La figure (47) est un schéma des niveaux $n = 1$ et $n = 2$, elle résume toutes les perturbations envisagées dans ce chapitre et les déplacements des niveaux qui en résultent.

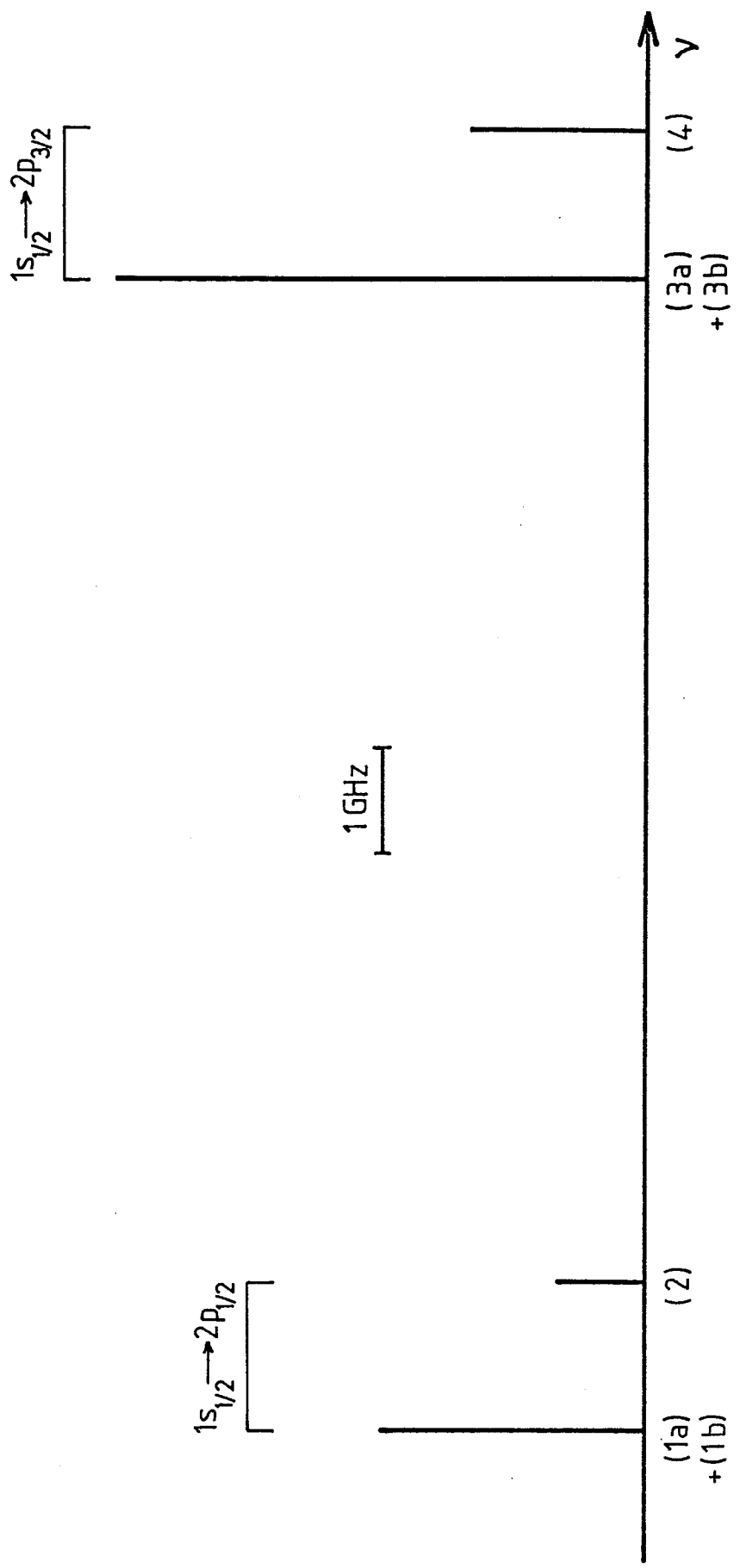
Les transitions possibles entre les niveaux $n = 1$ et $n = 2$ sont données par les règles de sélection :

$$\Delta l = \pm 1 \quad \text{et} \quad \Delta F = 0, \pm 1 \quad (F=0 \rightarrow F=0 \text{ est interdite})$$

Dans ces conditions, les transitions observables par absorption à un photon à partir du niveau $1s_{1/2}$ sont les suivantes : (les écarts indiqués le sont par rapport au centre de gravité des groupes de raies).

(1a)	$1s_{1/2}$	$F=1$	\longrightarrow	$2p_{1/2}$	$F=0$	} 59,2 MHz	} 1420 MHz	} 10969 MHz
(1b)	$1s_{1/2}$	$F=1$	\longrightarrow	$2p_{1/2}$	$F=1$			
(2)	$1s_{1/2}$	$F=0$	\longrightarrow	$2p_{1/2}$	$F=1$	} 23,7 MHz		
(3a)	$1s_{1/2}$	$F=1$	\longrightarrow	$2p_{3/2}$	$F=1$			
(3b)	$1s_{1/2}$	$F=1$	\longrightarrow	$2p_{3/2}$	$F=2$	} 1420 MHz		
(4)	$1s_{1/2}$	$F=0$	\longrightarrow	$2p_{3/2}$	$F=1$			

Les écarts en fréquence entre les diverses composantes sont indiqués à droite. Il est bien évident que ces transitions ne peuvent être résolues que si d'une part la résolution du système d'analyse est suffisante et d'autre part si leur largeur naturelle n'est pas trop importante. Dans le cas de l'hydrogène justement, les largeurs naturelles des transitions $1s \rightarrow 2p$ sont d'environ 100 MHz, il est donc exclu de pouvoir séparer les composantes hyperfines (1a) et (1b) et (3a) et (3b). (La durée de vie d'un niveau $2p$ est de 1,6 ns alors que celle du niveau métastable $2s$ est de 1/7 s).



structure de la raie Lyman α en champ nul

FIGURE 48

L'allure d'un spectre de la raie Lyman α en champ nul est représentée figure (48). Les intensités relatives ont été déduites des tables fournies dans la référence [85] et sachant par ailleurs que pour une transition sp on a :

$$sp_{3/2} : sp_{1/2} = 2 : 1$$

V.2. ETUDE DE L'EFFET STARK POUR L'ATOME D'HYDROGENE

L'application d'un champ électrique uniforme F au système atomique a pour effet d'ajouter au potentiel coulombien créé par le proton un potentiel de la forme :

$$Fz$$

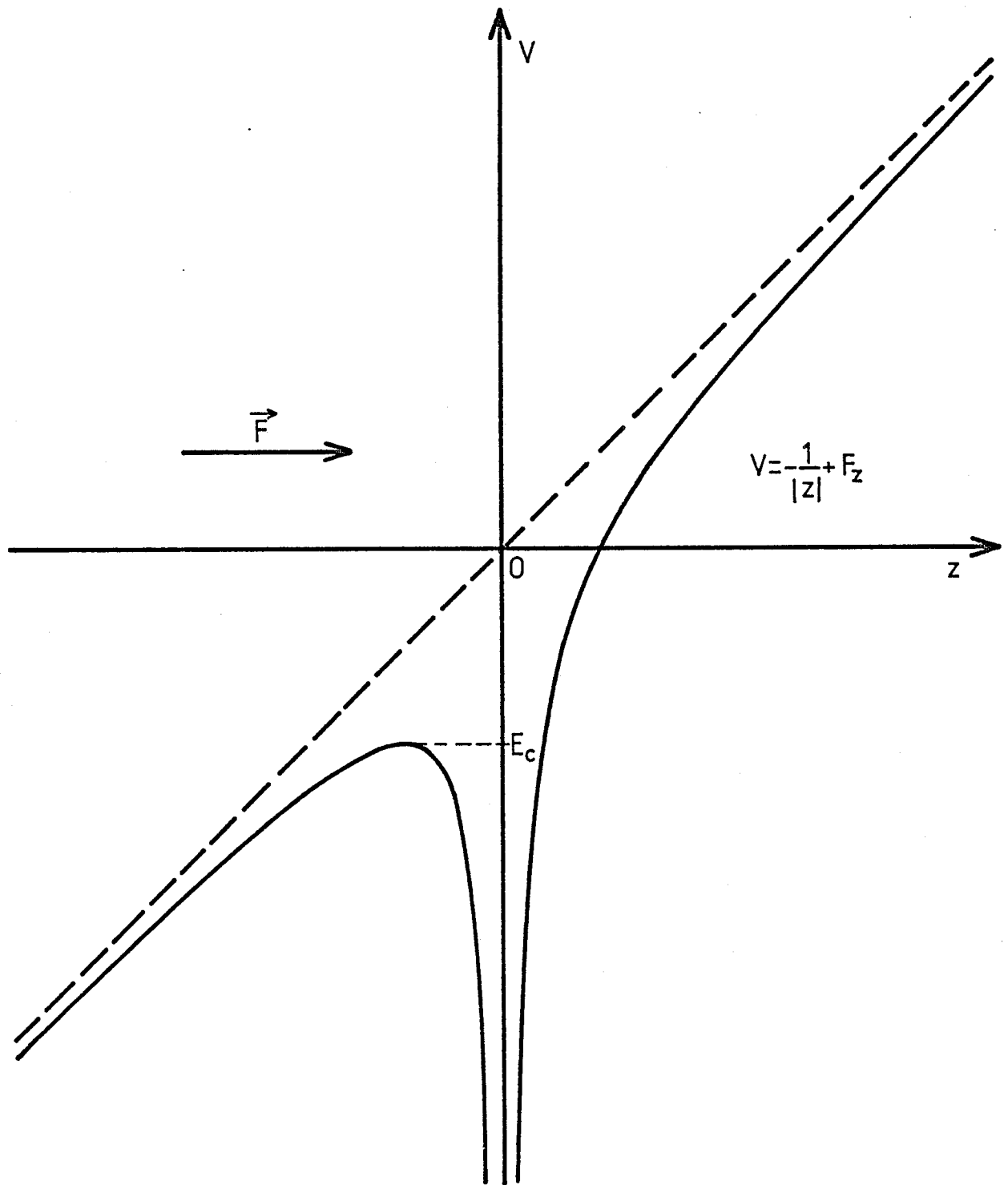
si ce champ est appliqué dans la direction Oz.

L'énergie potentielle de l'électron s'écrit alors :

$$V = -\frac{1}{R} + Fz$$

(Les unités utilisées sont les unités atomiques. L'origine des énergies correspond à la limite d'ionisation de l'atome en champ nul).

L'analyse unidimensionnelle de la fonction V suivant l'axe privilégié Oz (fig. 49) montre que l'électron n'est pas lié à proprement parler, mais qu'il existe une énergie "critique" $E_c = -2\sqrt{F}$ en dessous de laquelle l'électron ne peut s'échapper que par effet tunnel. L'électron est évidemment d'autant plus lié qu'il est proche du noyau, et au contraire l'atome s'ionise (classiquement) dès que son énergie dépasse E_c .



énergie potentielle dans la direction du champ
électrique \vec{F} (axe Oz)

FIGURE 49

D'un autre point de vue, on peut dire qu'un atome dans un état d'énergie donnée E s'ionise dès que le champ appliqué F est supérieur à une valeur critique :

$$F_c = \frac{E^2}{4}$$

E représente l'énergie de l'atome lorsqu'il s'ionise dans un champ F voisin de F_c et en première approximation on peut remplacer E par E_0 : énergie de l'atome non perturbé. Ce qui permet d'écrire également la loi simple :

$$F_c \approx \frac{1}{(2n)^4}$$

n étant le nombre quantique principal.⁽¹⁾

Cependant, ce modèle à une dimension ne donne qu'une idée sommaire de la réalité. Dans un modèle à trois dimensions, la limite d'ionisation classique E_c perd son caractère de frontière entre deux comportements très différents du système atomique.

Pour comprendre exactement le comportement de l'atome d'hydrogène en présence d'un champ électrique, il faut faire appel à une description quantique, connaître la fonction d'onde décrivant l'état de l'électron et donc résoudre l'équation de Schrödinger.

(1) Dans un système non hydrogénoïde, la loi $F_c \approx (2n^*)^{-4}$ est assez bien vérifiée expérimentalement à condition d'utiliser le nombre quantique effectif n^* à la place de n .

V.2.1. L'atome d'hydrogène en coordonnées paraboliques

L'atome d'hydrogène non perturbé peut être décrit en coordonnées sphériques du fait de l'invariance du système par rotation autour d'un axe quelconque ; dans ces conditions, l'hamiltonien est séparable suivant les variables angulaires et radiales. Il peut tout aussi bien être décrit en coordonnées paraboliques tout au moins dans l'approximation non relativiste. Ceci est dû à la symétrie particulière de l'atome d'hydrogène pour lequel les états de même nombre quantique principal n mais de nombres quantiques orbitaux ℓ différents sont dégénérés (à cause du potentiel exactement coulombien).

La perturbation due au champ électrique ne permet plus de décrire le système en coordonnées sphériques.

Examinons d'abord en détail les propriétés de symétrie de l'atome plongé dans un champ F suivant un axe Oz . De toute évidence, la symétrie de révolution autour de Oz est conservée. Ceci permet de ramener le problème à deux dimensions de la façon suivante : la seule composante du moment cinétique \vec{L} qui commute encore avec H est L_z ; les fonctions propres communes à H et L_z vont donc avoir suivant la coordonnée φ la forme : ($\varphi = \text{Arctg } \frac{y}{x}$)

$$\frac{e^{im_\ell \varphi}}{\sqrt{2\pi}} \quad \text{où } m_\ell \text{ est le nombre quantique associé à } L_z.$$

Il s'agit maintenant de trouver une autre constante du mouvement, qui commute avec H et L_z , de façon à ramener le pro-

blème à une dimension. Pour cela il est nécessaire d'utiliser un opérateur qui décrit la symétrie interne de l'atome c'est-à-dire celle du potentiel coulombien : c'est le vecteur de Runge-Lenz :

$$\vec{M}_0 = \vec{p} \wedge \vec{L} - \frac{\vec{r}}{r}$$

qui est une constante du mouvement lorsque l'atome n'est pas perturbé. Dans le cas où l'atome est soumis à un champ \vec{F} on introduit le vecteur de Runge-Lenz généralisé :

$$\vec{M} = \vec{M}_0 + \frac{1}{2}(\vec{r} \wedge \vec{F}) \wedge \vec{r}$$

dont la composante M_z reste une constante du mouvement puisqu'elle commute avec l'hamiltonien. M_z commute avec L_z et les trois opérateurs (H, L_z, M_z) forment un ensemble complet d'observables qui commutent (E.C.O.C.).

Ces propriétés indiquent que la fonction d'onde décrivant l'état de l'atome d'hydrogène doit être complètement séparable dans un système de coordonnées appropriées ; ce sont en l'occurrence les coordonnées paraboliques.

Les coordonnées paraboliques ξ, η, φ sont définies par les relations :

$$\xi = r + z \quad \eta = r - z \quad \varphi = \text{Arctg} \frac{y}{x}$$

L'équation de Schrödinger pour l'atome d'hydrogène placé dans un champ électrique uniforme F a la forme suivante : (F suivant Oz ; en unités atomiques) [86]

$$\left(\frac{1}{2}\Delta + E + \frac{1}{R} - F_z\right)\psi = 0 \quad (\text{V.8})$$

On cherche des solutions de la forme :

$$\psi = \frac{1}{\sqrt{\xi\eta}} f(\xi)g(\eta) \frac{e^{im_l\varphi}}{\sqrt{2\pi}}$$

Ce qui revient à résoudre le système d'équations différentielles ci-dessous, où les variables ξ et η sont séparées :

$$\left\{ \begin{array}{l} \frac{1}{2} \frac{d^2 f}{d\xi^2} - \left(\frac{m_l^2 - 1}{8\xi^2} - \frac{Z_1}{2\xi} - \frac{E}{4} + \frac{F}{8\xi} \right) f = 0 \\ \frac{1}{2} \frac{d^2 g}{d\eta^2} - \left(\frac{m_l^2 - 1}{8\eta^2} - \frac{Z_2}{2\eta} - \frac{E}{4} - \frac{F}{8\eta} \right) g = 0 \end{array} \right. \quad (\text{V.9})$$

Chacune de ces équations est en fait analogue à une équation de Schrödinger unidimensionnelle dont l'énergie totale serait représentée par le terme $\frac{E}{4}$ et l'énergie cinétique suivant les coordonnées ξ et η par les relations

$$\left\{ \begin{array}{l} T_\xi = \frac{E}{4} + \frac{Z_1}{2\xi} - \frac{m_l^2 - 1}{8\xi^2} - \frac{F}{8\xi} \\ T_\eta = \frac{E}{4} + \frac{Z_2}{2\eta} - \frac{m_l^2 - 1}{8\eta^2} + \frac{F}{8\eta} \end{array} \right.$$

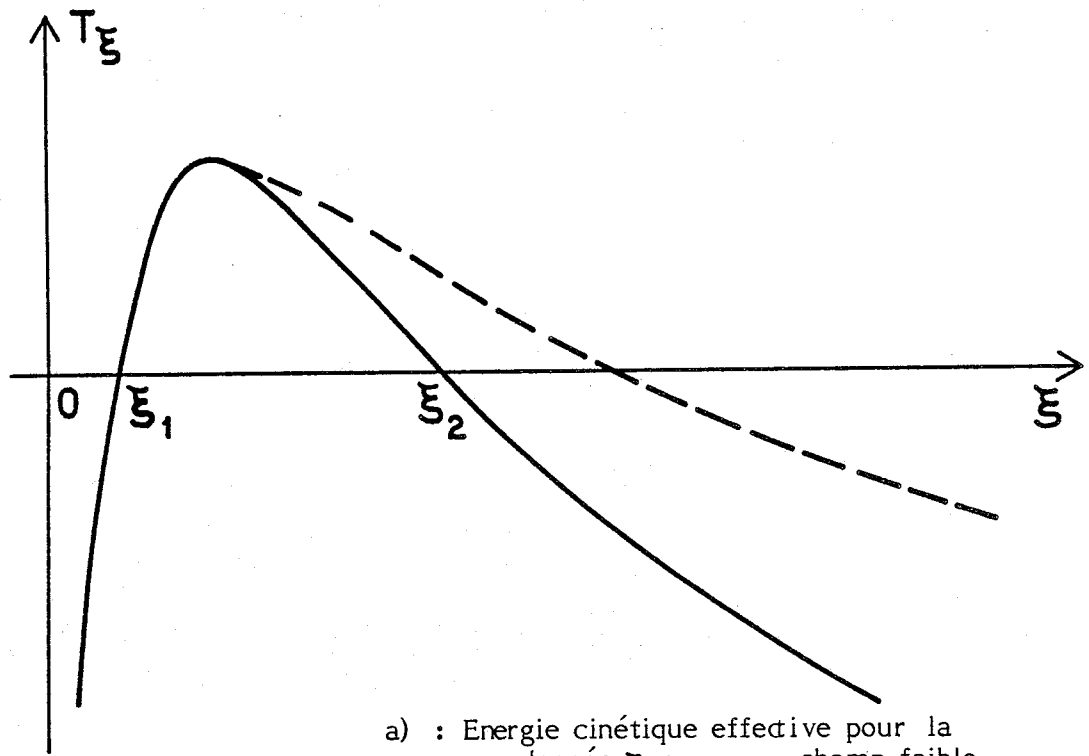
Ces équations sont couplées par les paramètres de séparation Z_1 et Z_2 qui sont eux-mêmes reliés par la relation :

$$Z_1 + Z_2 = 1 \quad (\text{V.10})$$

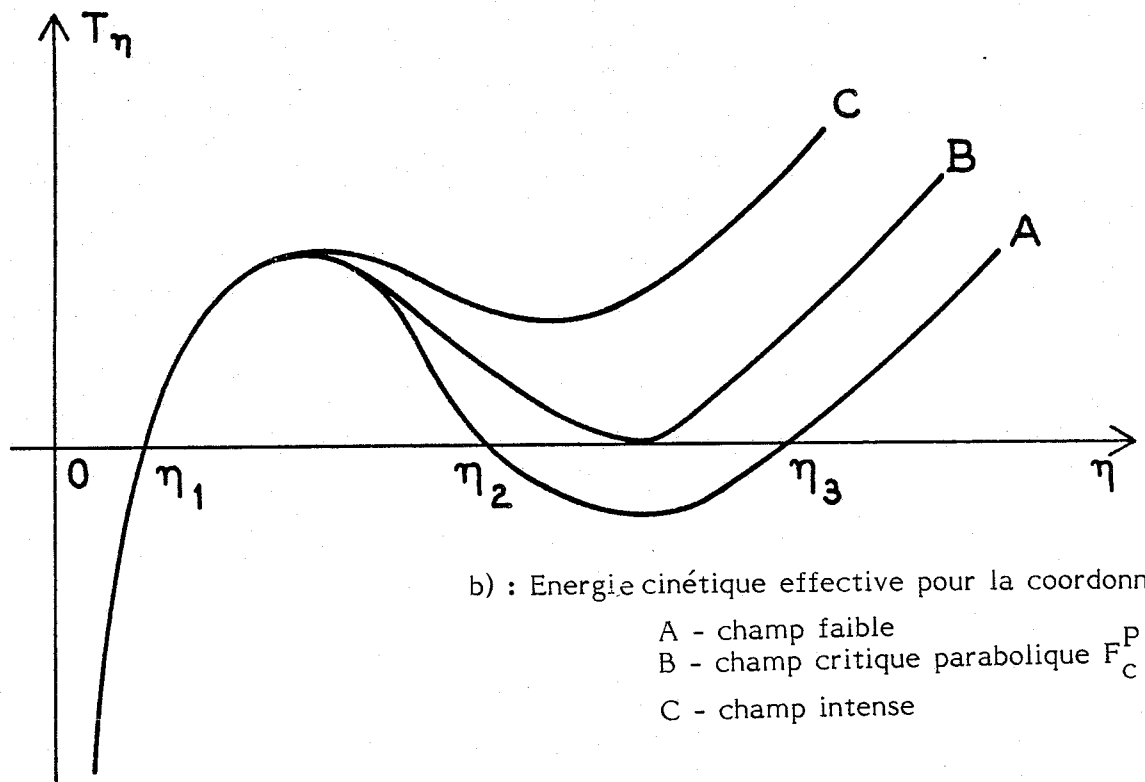
Ces paramètres représentent la charge apparente vue par l'électron dans son mouvement suivant ξ et η .

A ce stade on peut faire plusieurs remarques :

. L'axe de quantification Oz étant un axe de symétrie pour le système atomique, la projection L_z du moment cinéti-



a) : Energie cinétique effective pour la coordonnée ξ : ----- champ faible
 ——— champ intense



b) : Energie cinétique effective pour la coordonnée η
 A - champ faible
 B - champ critique parabolique F_C^P
 C - champ intense

FIGURE 50

que sur cet axe commute avec H et le nombre quantique magnétique m_ℓ est un bon nombre quantique.

. Un plan contenant Oz est un plan de symétrie pour H, par conséquent, le champ électrique ne lève pas la dégénérescence de $+m_\ell$ et $-m_\ell$. Seul m_ℓ^2 apparaît d'ailleurs dans les expressions (V.9).

. Lorsqu'on fait tendre la variable F vers l'infini on voit que le mouvement suivant ξ est borné alors que le mouvement suivant η ne l'est pas ($T_\eta \rightarrow +\infty$; les zones accessibles à l'électron sont les zones où T_ξ et T_η sont simultanément positives (fig. 50)). On s'attend donc à ce que le mouvement de l'électron soit lié suivant la coordonnée ξ . Suivant la coordonnée η , il y a possibilité d'ionisation et on pourra définir un seuil d'ionisation parabolique.

Pour des champs faibles, on peut résoudre le système d'équations (V.9) par un traitement perturbatif. Les termes $\frac{F}{g}\xi$ et $\frac{F}{g}\eta$ sont considérés comme des perturbations dans ces équations du mouvement et pour des valeurs de E et M_ℓ fixées, on y fait jouer aux paramètres Z_1 et Z_2 le rôle de valeur propre. On développe Z_1 et Z_2 suivant les puissances croissantes de F : (à l'ordre de perturbation N).

$$\begin{aligned} Z_1^{(N)} &= \sum_{P=0}^N Z_1^{(P)}(F, m_\ell, n_1, E) F^P \\ Z_2^{(N)} &= \sum_{P=0}^N Z_2^{(P)}(F, m_\ell, n_2, E) F^P \end{aligned} \quad (V.11)$$

Les entiers n_1 et n_2 apparaissant dans les relations (V.11)

sont introduits lorsqu'on résoud les équations (V.9) en champ nul ; les paramètres de séparation sont alors de la forme :

$$Z_1 = \frac{1}{n} \left(n_1 + \frac{1}{2} (|m_\ell| + 1) \right)$$

$$Z_2 = \frac{1}{n} \left(n_2 + \frac{1}{2} (|m_\ell| + 1) \right)$$

A l'aide de la relation $Z_1 + Z_2 = 1$ on en déduit que

$$n = n_1 + n_2 + |m_\ell| + 1 \quad (\text{V.11b})$$

où n est le nombre quantique principal.

La condition $Z_1^{(N)} + Z_2^{(N)} = 1$ permet de mettre l'énergie E d'un niveau stark donné sous la forme d'un développement suivant les puissances croissantes de F :

$$E = \sum_{P=0}^N E^{(P)} F^P$$

Nous donnons ici les termes de ce développement jusqu'à l'ordre 4, en ayant posé $k = n_1 - n_2$: [87]

$$E^{(0)} = - \frac{1}{2n^2}$$

$$E^{(1)} = \frac{3}{2}nk$$

$$E^{(2)} = - \frac{n^4}{16} [17n^2 - 3k^2 - 9m_\ell^2 + 19] \quad (\text{V.12})$$

$$E^{(3)} = \frac{3n^7}{32} k [23n^2 - k^2 + 11m_\ell^2 + 39]$$

$$E^{(4)} = - \frac{n^{10}}{1024} [5487n^4 + 35182n^2 - 1134m_\ell^2 k^2 + 1806n^2 k^2 + 147k^4 - 3402n^2 m_\ell^2 - 549m_\ell^4 + 5754k^2 - 8622m_\ell^2 + 16211]$$

Le terme $E^{(0)}$ est évidemment l'énergie de l'atome non perturbé. Le terme $E^{(1)}$ est l'effet Stark linéaire. Pour les atomes complexes, les états (non perturbés) de parités différentes ont des énergies différentes et le terme le plus important en champ faible est un terme quadratique qui traduit en général l'interaction des états issus du même n . Pour l'atome d'hydrogène, l'effet Stark linéaire est dû à la dégénérescence accidentelle des états de même n mais de l différents.

Si on se limite au premier ordre de perturbation, on en déduit les points suivants :

. Le niveau Stark de plus haute énergie du multiplet de nombre quantique principal n est obtenu en posant $n_1 = n-1$ et $n_2 = 0$; le niveau Stark de plus basse énergie en posant $n_2 = n-1$ et $n_1 = 0$. Par conséquent, la séparation en énergie ΔE entre les deux composantes extrêmes d'un multiplet est :

$$\Delta E = 3Fn(n-1) \quad (V.13)$$

. L'écart entre les termes d'un multiplet croît donc approximativement en n^2 : plus l'électron est loin du noyau, plus le moment dipolaire de l'atome est important.

V.2.2. Ionisation des niveaux Stark [105,106]

L'étude du mouvement de l'électron suivant la coordonnée ξ permet de déterminer les nombres quantiques E , m_l , n_1 qui définissent exactement tout état Stark de l'atome

d'hydrogène à un champ électrique F donné. On en déduit la valeur propre $Z_1(E, F, n_1, m_l)$ puis Z_2 par la relation (V.10) et on résoud l'équation du mouvement suivant la coordonnée η . Comme nous l'avons déjà noté, les états résonnants de l'atome suivant cette coordonnée ont un caractère quasi-stationnaires à cause de la possibilité d'ionisation par effet tunnel à travers la barrière de potentiel. Quand le champ F augmente, la barrière de potentiel s'amincit et s'abaisse jusqu'à disparaître pour un champ $F = F_c^P(n_1, m_l)$ (champ critique parabolique). L'ionisation par effet tunnel provoque l'élargissement progressif de chaque niveau jusqu'à se perdre dans un continuum lorsque $F > F_c^P$.

Malheureusement, lorsque $F \approx F_c^P$, on est souvent obligé de chercher des solutions au système d'équations (V.9) par une résolution numérique. On peut, en particulier, calculer la probabilité d'ionisation d'un niveau Stark déterminé en fonction champ appliqué.

Damburg et Kolosov ont cependant proposé une formule semi-empirique permettant de calculer le taux d'ionisation et applicable à n'importe quel niveau. [88 à 90]

$$\Gamma = \frac{(4R)^{2n_2+m+1}}{n^3 n_2! (n_2+m)!} \exp \left[-\frac{2}{3}R - \frac{1}{4}n^3 F (34n_2^2 + 34n_2 m + 46n_2 + 7m^2 + 23m + \frac{53}{3}) \right] \quad (\text{V.14})$$

Γ est le taux d'ionisation d'un niveau dont l'énergie E_0 dans le champ F est calculée par exemple par la formule (V.12). On a $R = (-2E_0)^{3/2}/F$.

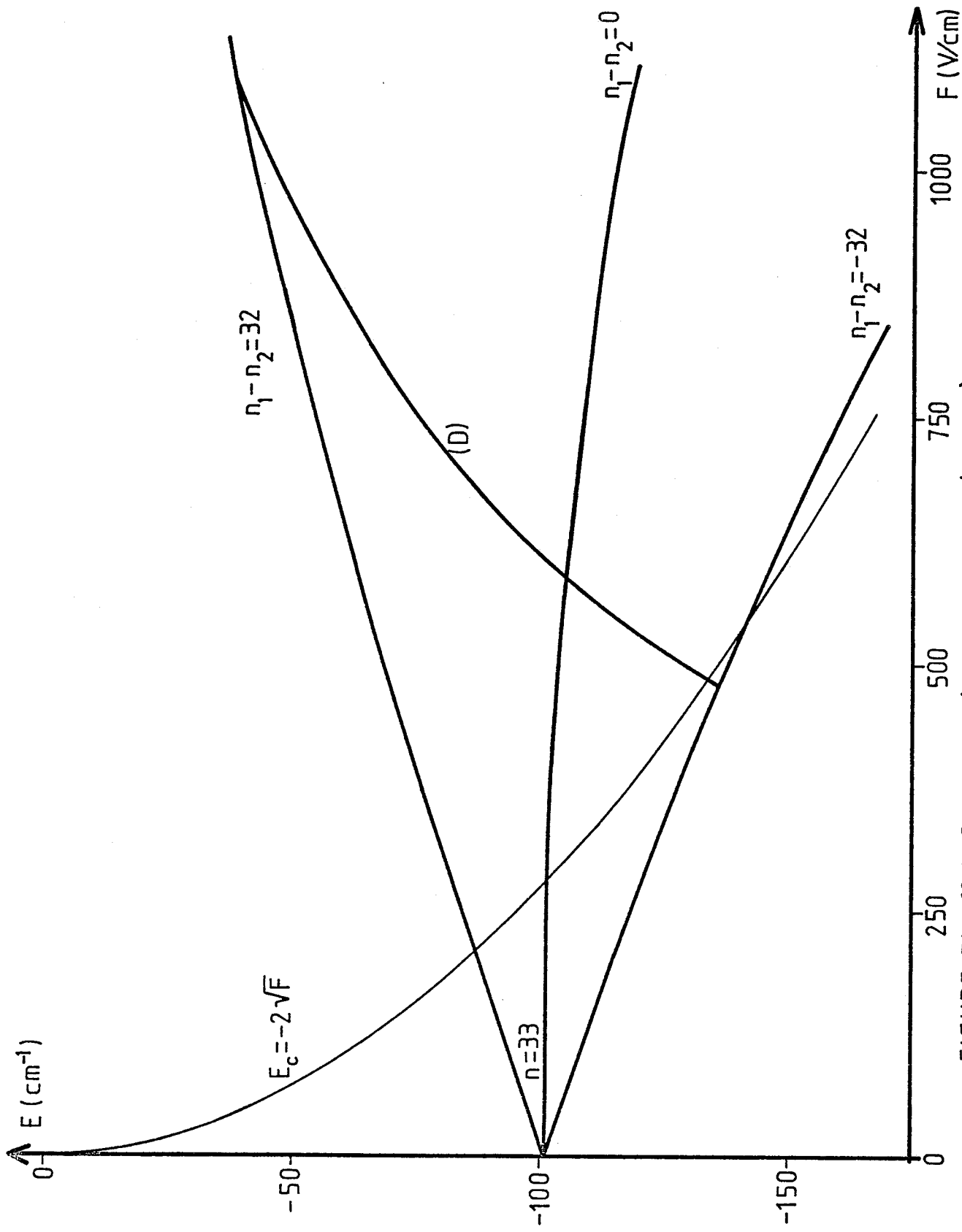


FIGURE 51-effet Stark du niveau $n=33$ de l'hydrogène

La figure (51) représente le spectre Stark $m_l = 0$ du niveau $n = 33$. On y a tracé la courbe (D) joignant les points pour lesquels la vitesse d'ionisation vaut 10^7 s^{-1} pour chaque niveau et la courbe classique $E_c = -2\sqrt{F}$.

A la vue de cette figure, nous remarquons les points suivants :

. Les états les plus proches de la limite d'ionisation en champ nul ont le champ critique le plus élevé : donc les états les plus stables d'une multiplicité sont ceux dont l'énergie de liaison est la plus faible. On peut expliquer ce fait qualitativement en recherchant quelles sont les circonstances les plus favorables pour l'ionisation.

Pour un nombre quantique principal donné, les états les plus facilement ionisés sont ceux dont l'orbite électronique se trouve essentiellement du côté de l'anode ($z < 0$, si $z > 0$ correspond au sens du champ \vec{F}) ; ceux-ci correspondent aux faibles valeurs du nombre quantique parabolique n_1 , soit à l'énergie de liaison la plus grande.

. La courbe décrivant la limite d'ionisation classique joint le niveau de n_1 le plus bas au point correspondant environ à son seuil d'ionisation. En effet quand l'atome est dans l'état $|n, n_1=0, m_l=0\rangle$ la probabilité de présence de l'électron du côté des $z < 0$ est maximale et le modèle élémentaire à une dimension doit permettre, avec une bonne approximation, le calcul du champ critique d'ionisation.

V.2.3. Croisement des niveaux Stark de l'hydrogène

Une autre conséquence de la symétrie du potentiel coulombien c'est que les niveaux Stark issus de deux multiplets différents se croisent. En ce sens, l'hydrogène est un cas particulier. Dans tous les autres systèmes atomiques, la présence de plusieurs électrons détruit la symétrie exacte du potentiel coulombien. Cette symétrie, comme nous l'avons vu, entraîne la définition des trois constantes du mouvement en présence d'un champ électrique statique auxquelles est associé l'ECOC (H, L_z, M_z). Les bons nombres quantiques sont par conséquent : l'énergie E , le nombre quantique magnétique orbital $|m_\ell|$ et la constante de séparation Z_1 (ou n_1). La fonction d'onde $|E, |m_\ell|, Z_1\rangle$ est fonction propre à la fois de H, L_z et M_z :

$$H|E, |m_\ell|, Z_1\rangle = E|E, |m_\ell|, Z_1\rangle$$

$$L_z|E, |m_\ell|, Z_1\rangle = |m_\ell| |E, |m_\ell|, Z_1\rangle$$

$$M_z|E, |m_\ell|, Z_1\rangle = (Z - 2Z_1)|E, |m_\ell|, Z_1\rangle$$

Lorsque le champ F est suffisamment intense, deux multiplets peuvent se mélanger. Lorsqu'il y a croisement entre deux niveaux $|E, |m_\ell|, Z_1\rangle$ et $|E, |m_\ell|, Z_1'\rangle$, l'élément de matrice $\langle E, |m_\ell|, Z_1 | H | E, |m_\ell|, Z_1' \rangle$ qui représente l'interaction entre les deux niveaux est nul puisque toutes les fonctions propres $|E, |m_\ell|, Z_1\rangle$ forment une base unique de l'ECOC (H, L_z, M_z).

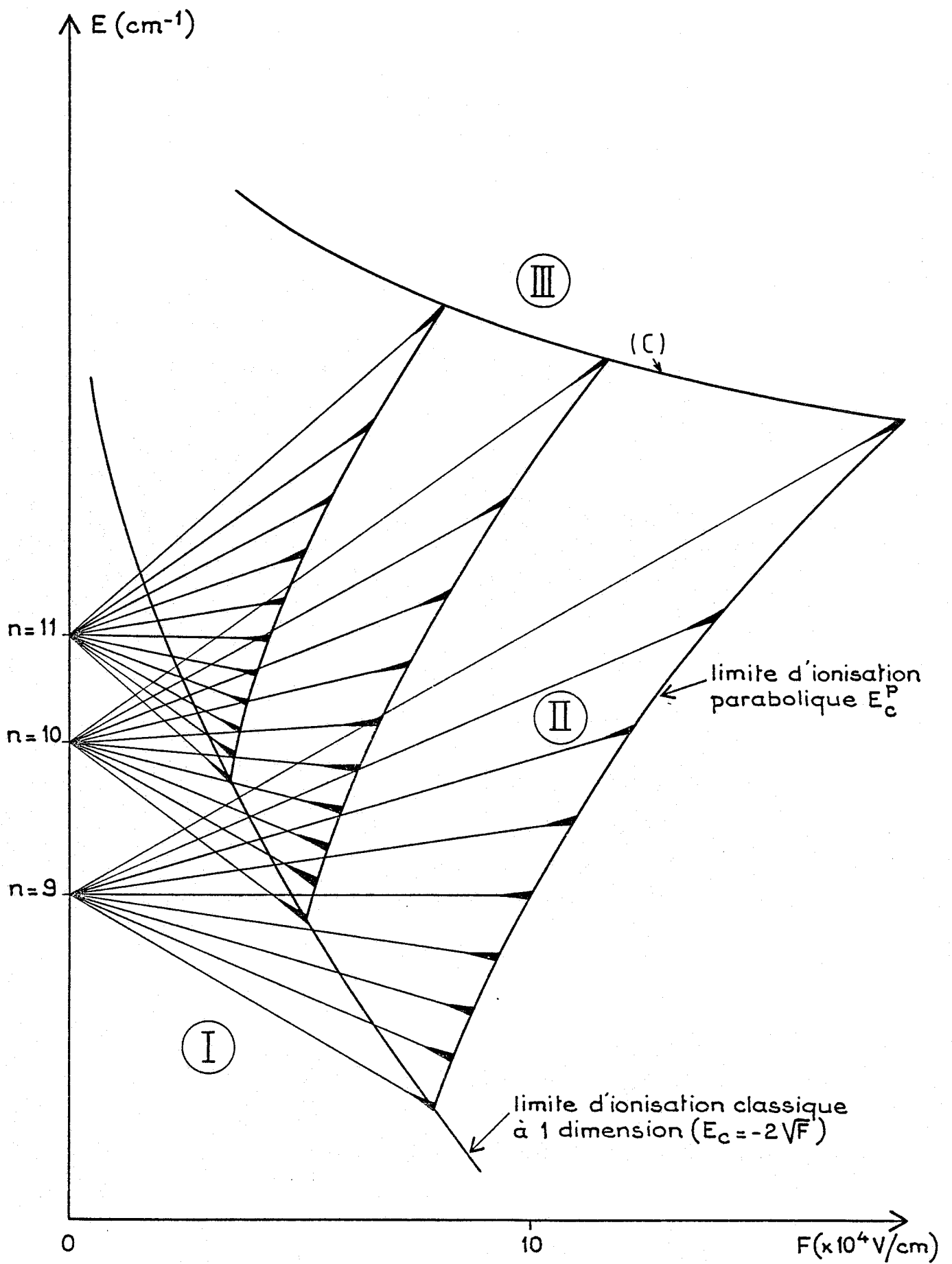


FIGURE 52

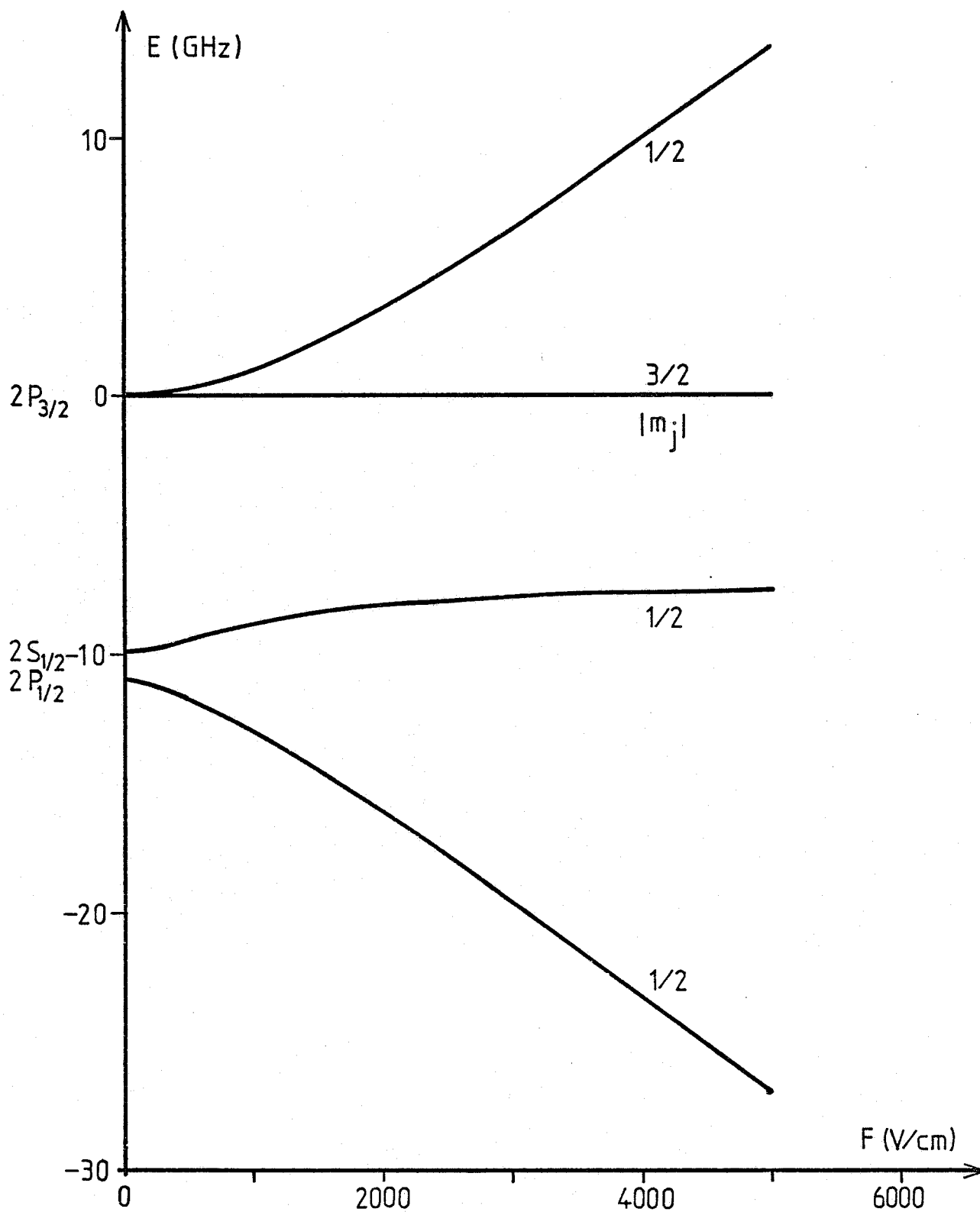
Si donc deux niveaux issus de multiplets différents peuvent se croiser sans interagir on a la possibilité de déterminer expérimentalement les champs critiques d'ionisation pour chaque niveau de nombre quantique parabolique n donné. En effet, si on prépare l'atome dans un état $|E, |m_l|, Z_1\rangle$, le fait d'augmenter le champ F va simplement changer l'énergie du système atomique jusqu'à l'énergie d'ionisation parabolique E_C^P (fig. 52) quand on atteint le champ critique F_C^P .

Trois zones, offrant des propriétés spectroscopiques particulières, sont à distinguer : [91]

. Dans la zone (1) on n'observe que des structures Stark quasi-stables de faible largeur spectrale. En appliquant un champ F constant et en utilisant la technique d'ionisation par champ on fait de la spectroscopie de position et d'intensité des niveaux Stark.

. Dans la zone (2), située entre la limite classique et la courbe (C) (limite pour les composantes Stark "**bleues**"), on trouve en même temps des structures quasi-stables et un continuum d'ionisation issu des niveaux supérieurs. Cependant, pour les raisons indiquées plus haut, ces niveaux discrets n'interagissent pas avec le continuum. Dans cette région on peut soit faire de la spectroscopie des niveaux quasi-discrets comme dans la zone (1), soit de la photoionisation en présence d'un champ constant seul pour étudier les propriétés d'ionisation des états instables.

. Dans la zone (3), au-delà de la courbe (C), on obtient seulement un continuum d'ionisation.



Effet Stark du niveau $n=2$ de l'hydrogène en champ électrique faible

FIGURE 53

V.2.4. Effet Stark du niveau $n = 2$

Pour les états de Rydberg tout ce qui vient d'être dit est exact même en champ faible puisque les déplacements en énergie des niveaux Stark sont très supérieurs à la structure fine qui peut encore subsister (au-delà de $n = 4$ la structure fine est inférieure à 100 MHz).

Pour le niveau $n = 2$, en champ faible, ce n'est plus le cas puisque la structure fine et le déplacement de Lamb sont très importants (resp. $0,365 \text{ cm}^{-1}$ et $0,0353 \text{ cm}^{-1}$).

Décrire l'effet d'un champ électrique sur ce niveau, demande de prendre en considération les effets relativistes, les corrections radiatives et les interactions magnétiques avec le noyau.

Ce travail a été accompli par Lüders (sans toutefois tenir compte des interactions hyperfines) [92]. Les états Stark sont caractérisés par les nombres quantiques $|n, \ell, j, F, m_F\rangle$ et si H' est l'hamiltonien de perturbation, les éléments de matrice sont donnés par :

$$\langle n' \ell' j' F' m_F' | H' | n \ell j F m_F \rangle$$

Cette expression peut être développée en utilisant les techniques des moments angulaires. Les résultats de la diagonalisation numérique de cette matrice pour $n = 2$ sont montrés figure (53). Pour des champs électriques produisant des déplacements Stark beaucoup plus grands que la structure fi-

ne, l'effet Stark devient linéaire ; on retrouve naturellement ce qui a déjà été dit pour les états de Rydberg.

Pour terminer ce paragraphe faisons une remarque sur les durées de vie des états 2s et 2p. L'état 2p peut effectuer une transition radiative à un photon vers l'état 1s par conséquent sa durée de vie τ_p est très courte : de l'ordre de $1,6 \cdot 10^{-9}$ s, ce qui confère à la transition une largeur naturelle de 100 MHz. Au contraire la transition dipolaire électrique 2s \rightarrow 1s est interdite à un photon puisque les états 2s et 1s ont la même parité ; par conséquent l'état 2s est métastable et la principale cause de désexcitation c'est un processus à deux photons $\ell = 0 \rightarrow \ell = 0$ qui n'est pas interdit mais dont la probabilité est très faible. La durée de vie de l'état 2s est d'environ 1/7 seconde, la largeur naturelle de la transition 1s \rightarrow 2s est donc extrêmement faible, ce qui permet de l'utiliser pour des mesures très fines et de déterminer avec plus de précision la constante de Rydberg, le rapport des masses électron/proton et le déplacement de Lamb de l'état fondamental 1s de l'hydrogène [15a, 84]. Dans un champ électrique, il y a mélange des fonctions d'ondes des états $n = 2$, $j = \frac{1}{2}$ et les durées de vie des niveaux $2s_{1/2}$ et $2p_{1/2}$ en sont affectés de sorte que pour un champ de l'ordre de 500 V/cm les durées de vie sont devenues toutes deux peu différentes de $2\tau_p$.

V.3. RESULTATS EXPERIMENTAUX

Toutes les expériences actuellement menées sur l'hydrogène sont limitées par la résolution instrumentale des systèmes d'analyse lorsqu'on adopte un schéma d'excitation à un photon à partir du niveau fondamental $1s_{1/2}$. Seul le groupe Rottke, Zacharias, a pu récemment résoudre (approximativement) la structure hyperfine du niveau fondamental dans le but de produire des protons polarisés [94].

De nombreuses études, (en champs électrique et magnétique) qui pouvaient être effectuées à basse résolution, ont été rapidement publiées [74, 95 à 97]. Bien que des résultats importants aient été obtenus, il reste encore beaucoup à attendre d'expériences à haute résolution.

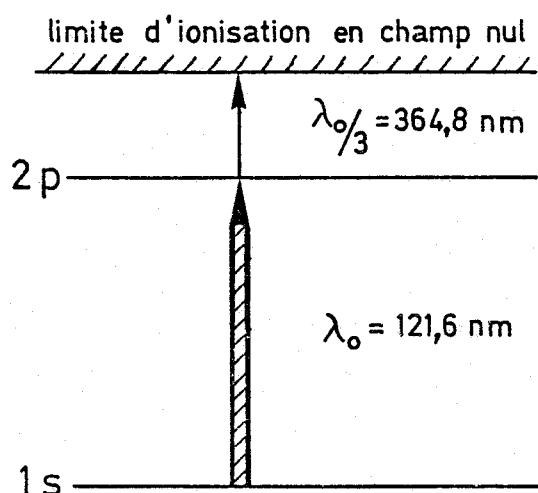
C'est pourquoi nous avons pu tirer parti de l'excellente résolution offerte par le système laser que nous avons mis au point pour mener à bien quelques expériences originales et nouvelles sur l'atome d'hydrogène :

- Spectroscopie de la raie Lyman α ($1s \rightarrow 2p$) en champ nul et en présence d'un champ électrique faible.
- Spectroscopie à haute résolution des états de Rydberg jusqu'à $n = 100$, en champ nul.
- Spectroscopie à haute résolution d'états de Rydberg en présence de champs électriques. Etude de l'ionisation.
- Photoionisation en présence d'un champ électrique près de la limite d'ionisation en champ nul.

V.3.1. Spectroscopie de la raie Lyman α ($1s \rightarrow 2p$)

A) En champ nul

Nous rappelons brièvement le schéma d'excitation adopté dans ce cas :



Le niveau $2p$ est excité par absorption d'un photon à la longueur d'onde de $121,6 \text{ nm}$ à partir du niveau fondamental $1s$. Pour faire la spectroscopie de la raie Lyman α on peut soit i) détecter la fluorescence sur la transition $2p \rightarrow 1s$, soit

ii) ioniser l'atome par photoionisation à partir du niveau $2p$. Nous avons essayé la solution i) puisqu'à première vue, il s'agit de la plus simple. En réalité, compte-tenu du nombre d'atomes contenus dans le volume d'interaction ($\sim 7,5 \cdot 10^5$ atomes : évalués au chapitre IV), si on excite 10 % de ces atomes, $7,5 \cdot 10^4$ photons de fluorescence sont émis à chaque impulsion. Sachant par ailleurs que l'on perd un facteur environ 100 pour la collection de la lumière (angle solide et transmission de l'optique dans l'U.V. lointain) et un facteur 10 à cause du rendement quantique du photomultiplicateur (un facteur 100 s'il s'agit de galettes de microcanaux [98]), on ne peut espérer détecter que quelques dizaines de

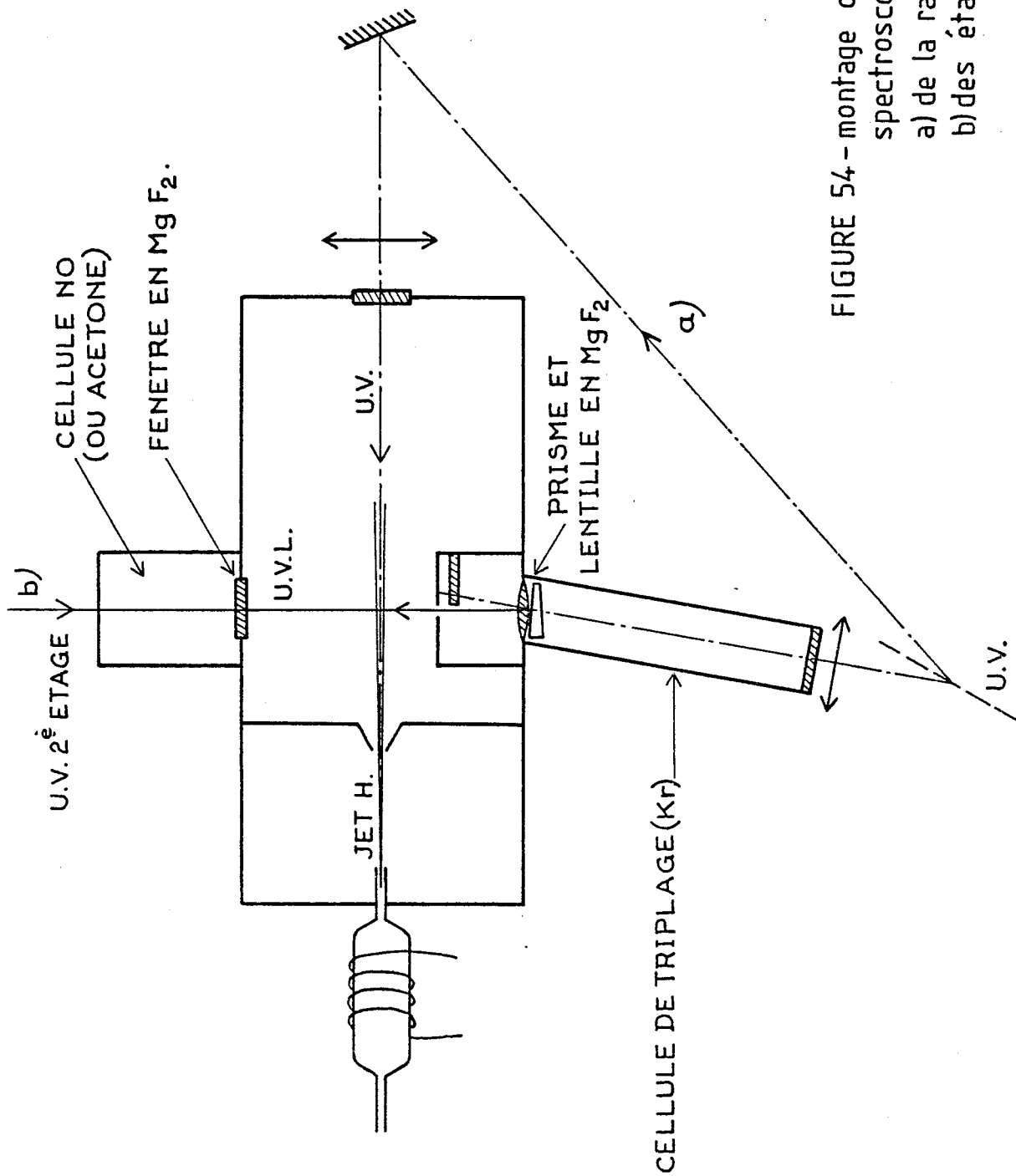


FIGURE 54 - montage optique pour la
 spectroscopie
 a) de la raie Lyman α
 b) des états de Rydberg

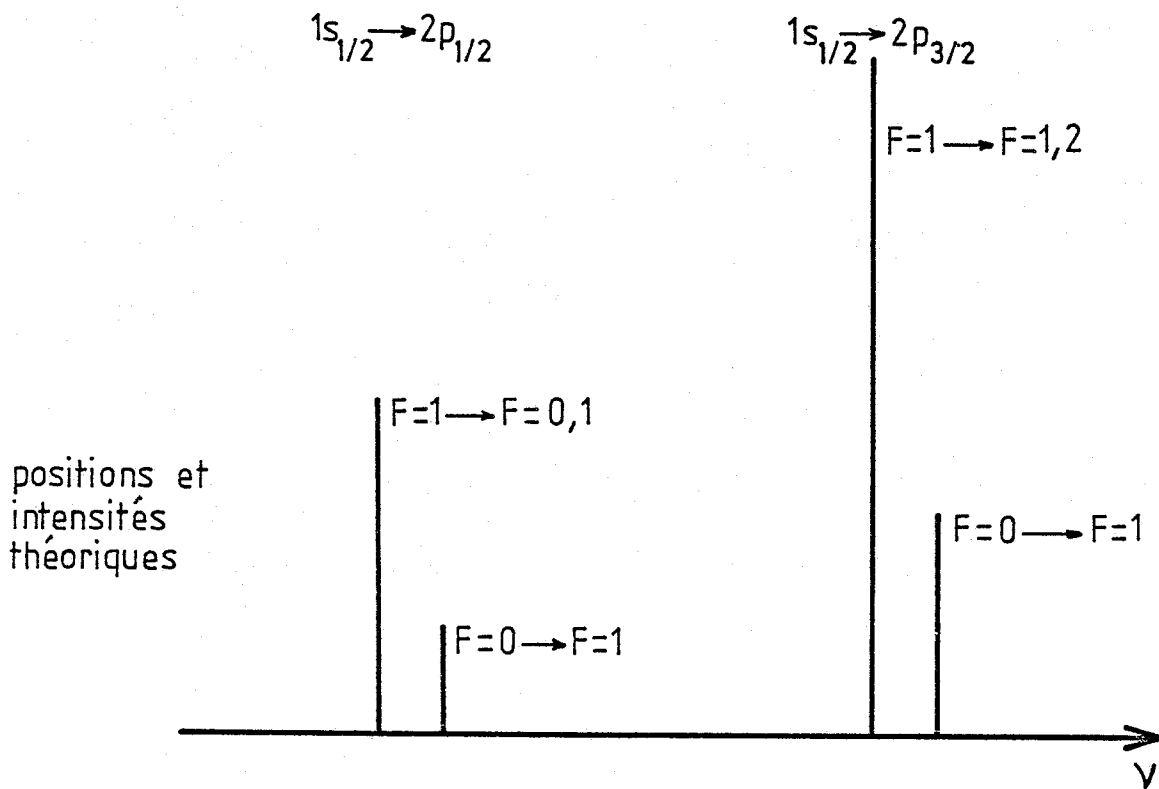
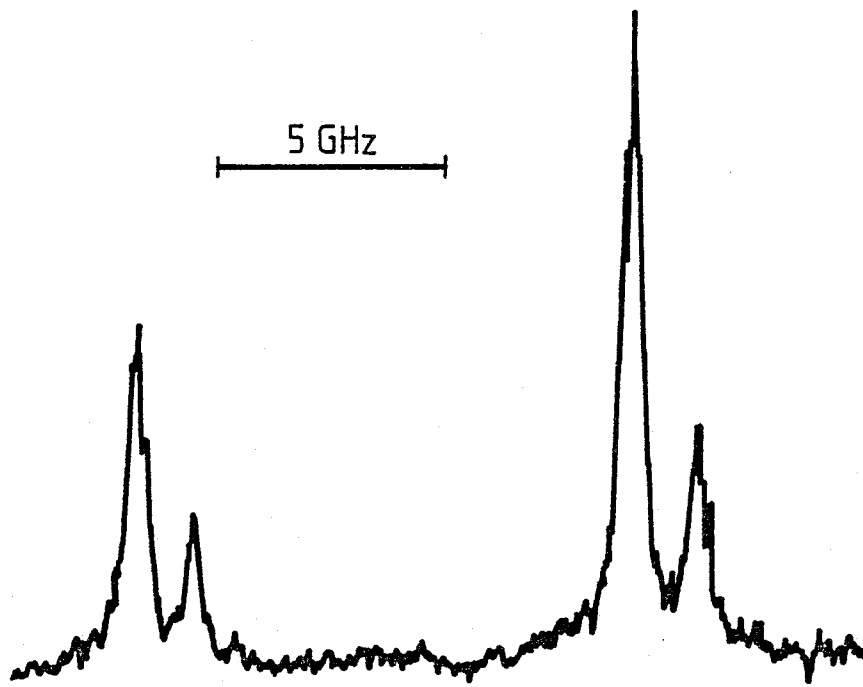
photons par impulsion. Les détecteurs (photomultiplicateurs "solar blind" en particulier) ne sont pas parfaitement insensibles à la longueur d'onde de 365 nm, par conséquent la mise en jeu d'une puissance laser considérable rend inévitable la lumière parasite aussi bien à 365 nm qu'à 122 nm et selon toute vraisemblance l'impossibilité de sortir un signal de fluorescence du bruit de lumière parasite. Nous n'avons effectivement pas pu observer de signal de fluorescence dans ces conditions.

Nous avons donc opté pour la solution ii) qui consiste à photoioniser l'atome à partir du niveau 2p en utilisant la lumière de longueur d'onde 364,8 nm servant à produire l'U.V. lointain ; dans l'atome d'hydrogène, l'énergie d'un photon à cette longueur d'onde est exactement suffisante pour faire passer l'atome du niveau 2p au continuum d'ionisation. Le montage optique est schématisé figure (54). Il aurait été possible d'utiliser directement, pour le deuxième étage, le faisceau U.V. servant au triplage de fréquence ; les faisceaux U.V. et U.V. lointain sont alors naturellement superposés dans la zone d'interaction à condition de passer par le centre optique de la lentille de focalisation. Nous avons opéré de cette façon dans un premier temps mais nous avons noté que les raies enregistrées étaient déformées et élargies vraisemblablement par un excès de puissance sur le deuxième étage.

Dans le schéma adopté, on sépare à l'aide d'un prisme en MgF_2 (d'angle $\sim 19^\circ$) les faisceaux U.V. et U.V. lointain

de sorte que seul le faisceau U.V. lointain pénètre dans la zone d'interaction. Le faisceau U.V. de forte puissance est arrêté par un diaphragme en acier inoxydable ; une petite lame en silice évite que les projections de matière dues à l'impact laser ne viennent polluer la lentille en MgF_2 . Une lame nue en silice, placée avant la cellule de triplage réfléchit environ 5 % de la puissance U.V. dans l'axe du jet pour photoioniser les atomes déjà portés dans le niveau $2p$ (l'effet Doppler n'a pas d'importance sur le deuxième étage qui sert simplement de système de détection). Le volume d'interaction lasers-jet est situé à l'intérieur d'un condensateur formé de deux plaques en acier inoxydable distantes de 10 mm. La plaque supérieure est percée d'un trou de $15 \text{ mm} \times 10 \text{ mm}$ sur lequel est soudée une grille en nickel de faible épaisseur ($40 \mu\text{m}$) et de transparence environ 45 % pour que les lignes de champ à l'intérieur du condensateur soient peu déformées. Cette plaque est reliée à la masse tandis que la plaque inférieure est portée à un potentiel positif.

Une impulsion de champ électrique de quelques volts et de signe approprié, arrivant juste après l'impulsion laser, permet de canaliser les ions formés vers le multiplicateur d'électrons dont la cathode est portée à un potentiel négatif (-2000 V à -3000 V). Ce système de détection a l'avantage évident de permettre de collecter la plus grande partie des atomes excités. Il suffit donc de faire varier la fréquence du laser U.V. pour réaliser un spectre de la raie Lyman α .



structure de la raie Lyman α en champ nul

FIGURE 55

Un exemple de spectre enregistré dans ces conditions est donné figure (55). On y a porté également, à titre indicatif, les positions et intensités théoriques des transitions correspondantes. On sépare facilement la structure hyperfine du niveau fondamental (1420 MHz) puisque la résolution mesurée est de 350 MHz. Les intensités des raies ne sont pas très significatives à cause des fluctuations de puissance importantes sur le laser du premier étage ; le système de normalisation (division du signal d'ions par un signal proportionnel à la puissance du laser) n'était pas opérationnel sur cette expérience au moment de l'enregistrement. Malgré cela, on note un bon accord avec la théorie, ce qui laisse à penser qu'il n'y a pas de phénomène de saturation dans les conditions expérimentales où nous étions, c'est-à-dire :

Energie de l'U.V. à $\lambda = 364,8 \text{ nm} = 10 \text{ mJ/impulsion}$
 Pression du krypton seul = 37 mb (3,7 KPa)
 Puissance crête de l'U.V. à 121,6 nm $\approx 0,07 \text{ W}$
 Energie de l'U.V. deuxième étage = 0,5 mJ/impulsion
 Diamètre estimé du faisceau U.V. dans la zone d'interaction , environ 1 mm.

Donc la densité de puissance crête de 10 W/cm^2 (environ $6 \cdot 10^5 \text{ W/cm}^2 \cdot \text{nm}$) était plus faible que l'intensité de saturation. Celle-ci a été estimée par certains auteurs [99,100] à $10^7 \text{ W/cm}^2 \cdot \text{nm}$, ce qui est cohérent avec nos observations puisqu'à une puissance de 1 W crête, les spectres présentent déjà un élargissement notable. Le spectre présenté ici fait en

champ électrique
V/cm

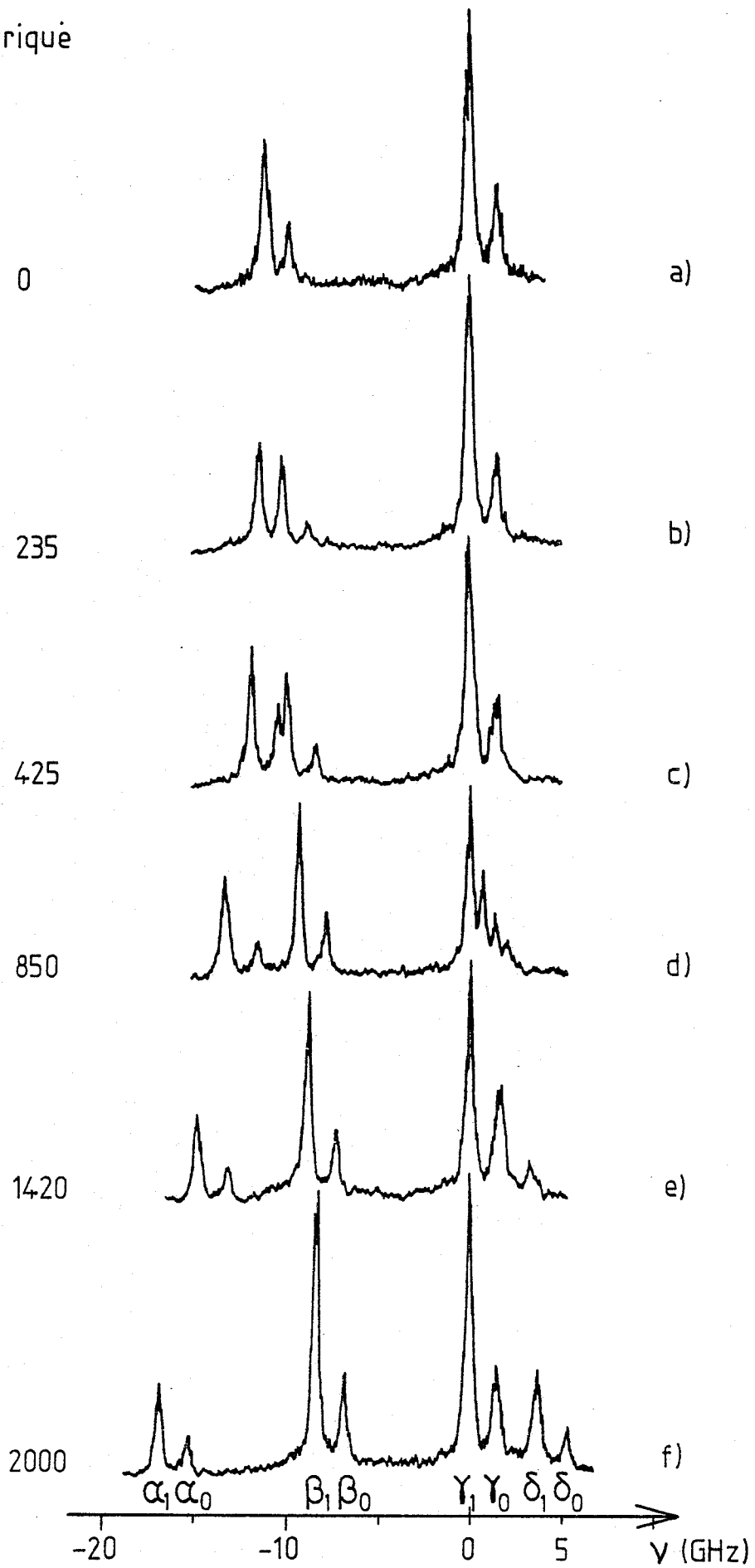


FIGURE 56 - enregistrements des raies Stark du niveau $n=2$ de l'atome d'hydrogène

outre apparaît la structure fine (écart $2p_{1/2}-2p_{3/2}$ valant 10969 MHz) mais pas le déplacement de Lamb puisque la transition $1s_{1/2} \rightarrow 2s_{1/2}$ est interdite.

B) En présence d'un champ électrique statique faible

Le champ électrique nécessaire pour ioniser un atome d'hydrogène dans l'état $n = 2$ est d'environ $3 \cdot 10^7$ V/cm. Dans cette expérience, nous nous sommes limités à un champ de 5000 V/cm, ce qui représente un domaine de champ faible, où justement (cf. § V.2.4) le comportement de l'atome dans l'état $n = 2$ n'est pas linéaire ; ceci est dû à la présence de la structure fine et du déplacement de Lamb qui sont du même ordre de grandeur que les déplacements Stark.

Le montage utilisé ici est le même que celui qui vient d'être décrit (fig. 54). Cette fois-ci, le champ appliqué sur les plaques suffit pour collecter les ions sans qu'il soit nécessaire d'ajouter un champ pulsé.

Sur la figure (56) sont représentés quelques exemples d'enregistrements pour des champs compris entre 0 et 2000 V/cm. On voit l'évolution des différents niveaux et on note pour l'enregistrement (d) correspondant à un champ de 850 V/cm, l'interpénétration des raies qui met bien en évidence la résolution atteinte par le système laser. A partir d'un champ supérieur à 200 V/cm le niveau $2s_{1/2}$ apparaît à cause du mélange des fonctions d'ondes des états $2s_{1/2}$ et $2p_{1/2}$. Ces enregistrements ont été réalisés avec une polarisation rec-

F-4530 V/CM

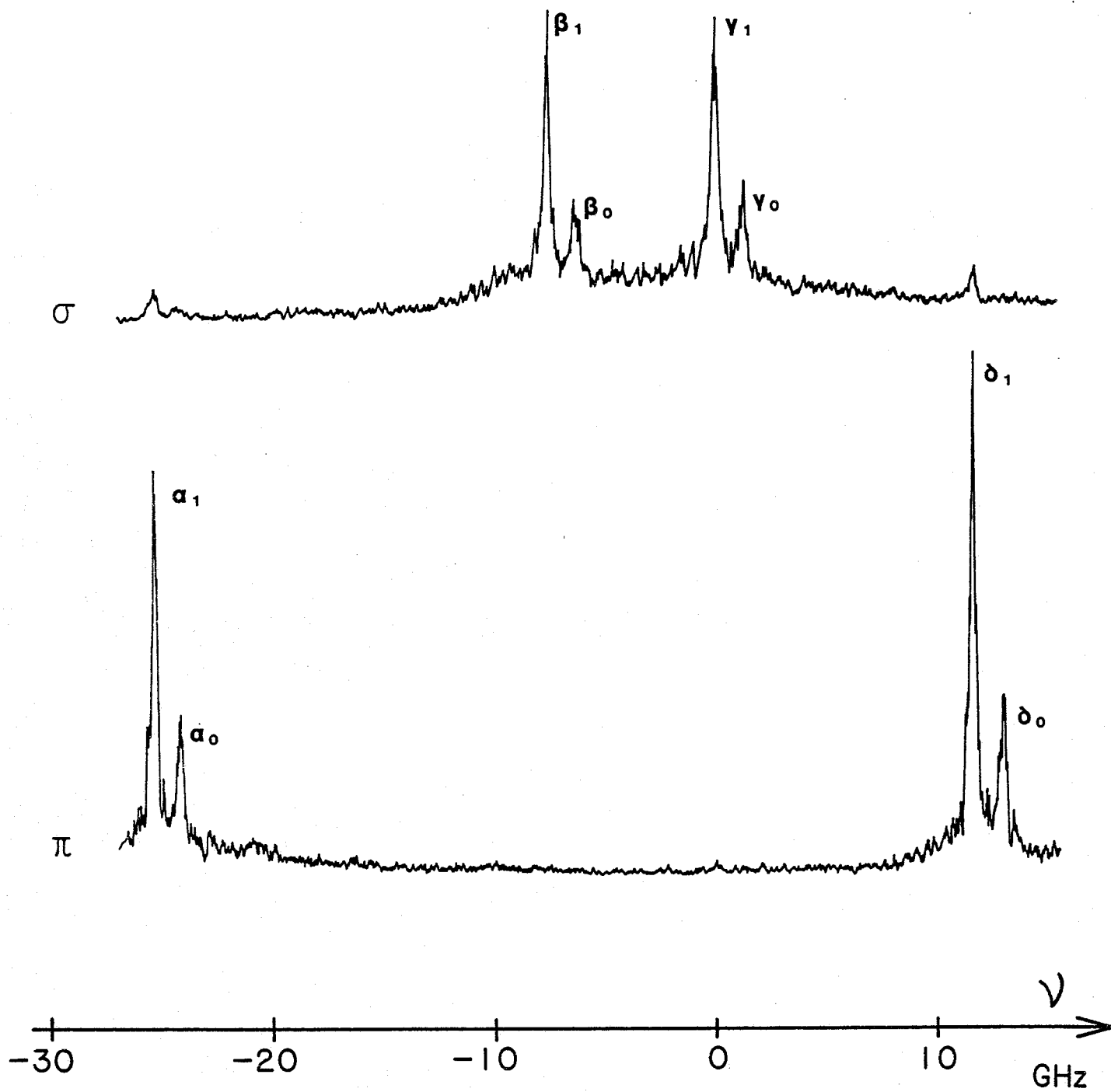


FIGURE 57

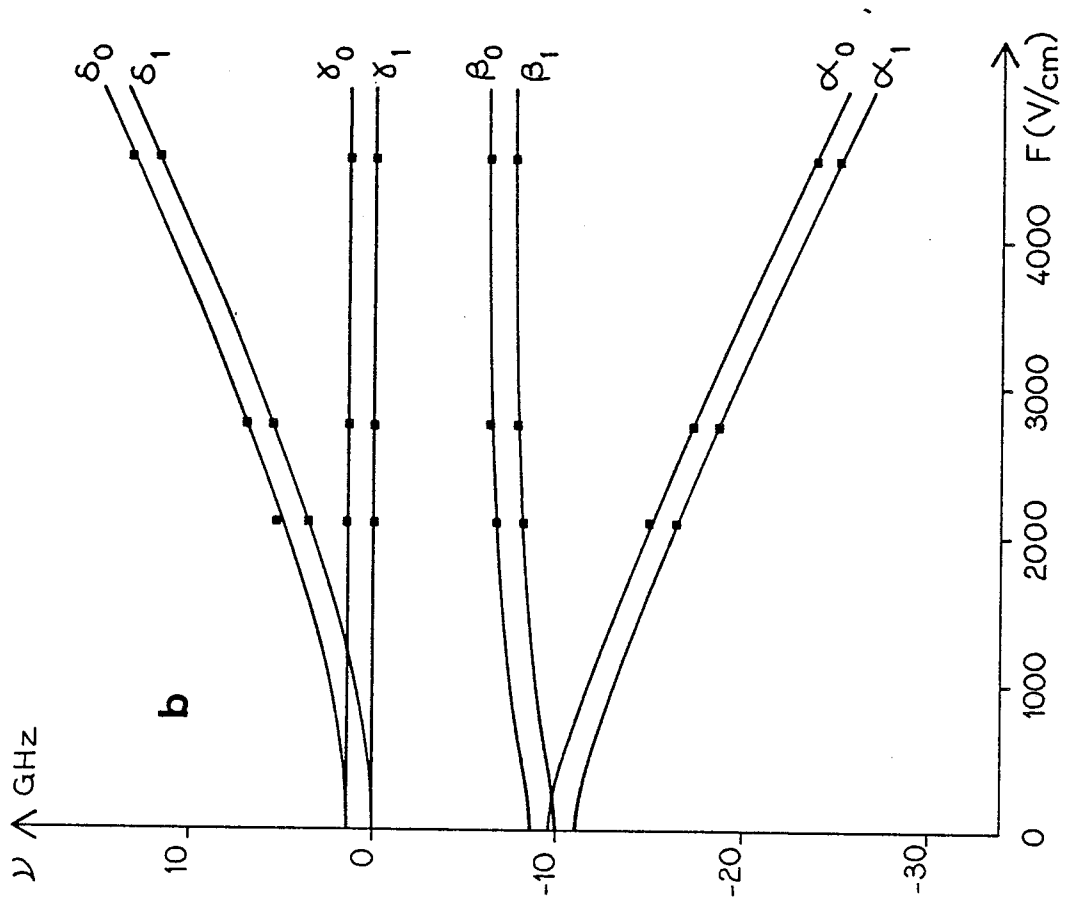
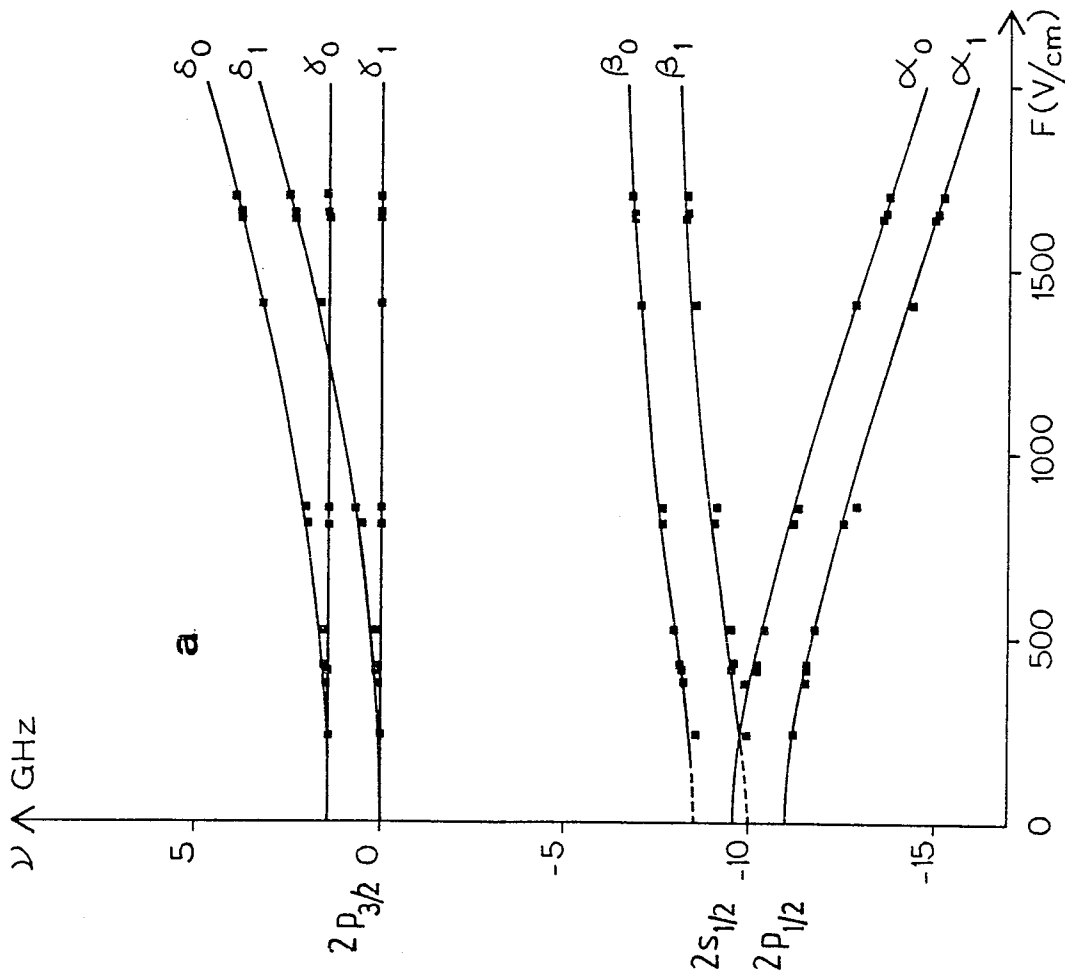
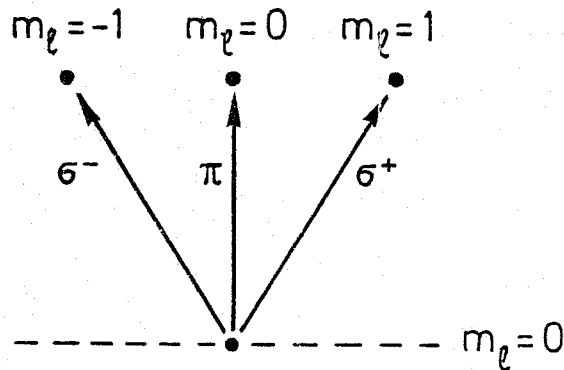


FIGURE 58

tiligne de la lumière du premier étage, intermédiaire entre σ et π , ceci pour bien montrer l'évolution des niveaux. En réalité, si on utilise des polarisations rectilignes π ou σ sur le premier étage on peut déterminer la pureté des fonctions d'ondes relatives aux états analysés, et au fur et à mesure que le champ augmente, on constate que les états de $m_\ell = 0$ se distinguent des états de $|m_\ell| = 1$. Le nombre quantique m_ℓ peut alors être considéré comme un bon nombre quantique. Les règles de sélections pour des transitions à partir du niveau $1s$ ($m_\ell = 0$) sont déterminées de la façon suivante :



Le montage actuel (champ F perpendiculaire à la direction de propagation de la lumière) ne permet pas de distinguer entre σ_+ et σ_- et d'autre part, le champ électrique ne lève pas la dégénérescence en m_ℓ . Le spectre réalisé à 4530 V/cm (fig. 57) montre clairement la sélection des niveaux suivant la polarisation.

Sur la figure (58) on a comparé les positions relatives des raies obtenues expérimentalement avec les courbes théoriques données par la diagonalisation de la matrice H' sur la base $|n, \ell, j, F, m_F\rangle$ (§ V.2.4). Compte tenu des incerti-

enregistrement de niveaux de Rydberg de l'atome d'hydrogène

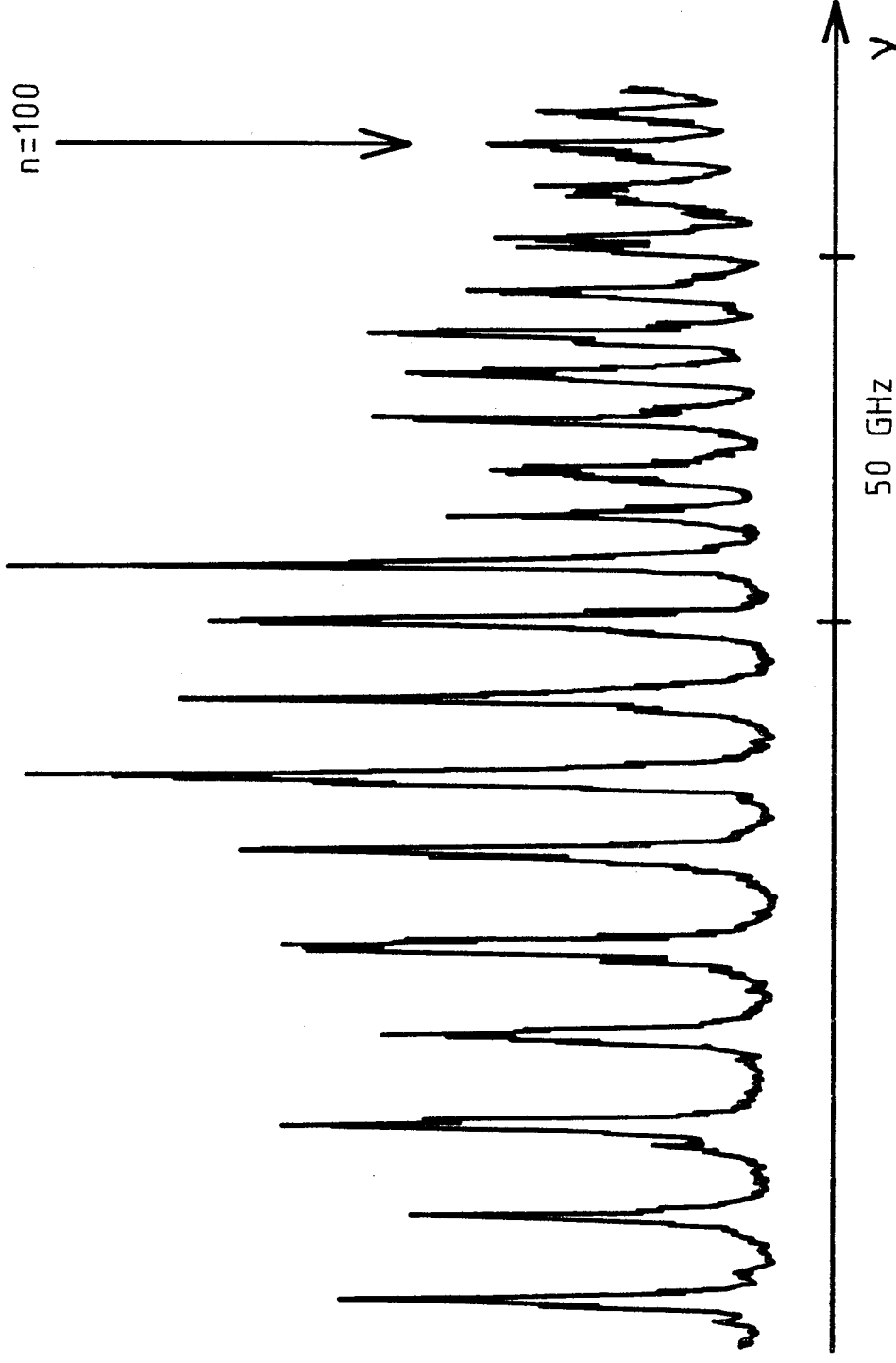


FIGURE 59

tudes sur le pointé des raies et sur la valeur du champ électrique (environ 2 %), ces résultats sont en général en bon accord avec la théorie.

V.3.2. Spectroscopie des états de Rydberg

A) En champ nul

Avec un premier étage laser fixe et accordé sur la transition $1s \rightarrow 2p$, la spectroscopie des états de Rydberg nécessite l'emploi d'un deuxième étage laser de longueur d'onde variable et émettant de la lumière U.V. dans la gamme 365-370 nm. Le laser du deuxième étage, comme nous l'avons vu au chapitre 2 a sensiblement les mêmes caractéristiques que le système laser fournissant l'U.V. du premier étage ; ceci va nous autoriser à faire la spectroscopie à haute résolution des états de Rydberg de l'hydrogène avec le montage optique schématisé figure (54b). La détection se fait par ionisation par champ. La voie (a) sert épisodiquement pour contrôler que la longueur d'onde laser du premier étage est toujours bloquée au maximum d'une des transitions $1s \rightarrow 2p$.

Nous avons enregistré des spectres de Rydberg jusqu'à $n \approx 100$ (fig.. 59). A une telle valeur de n , un très faible champ électrique parasite suffit pour élargir considérablement les raies. Pour fixer les idées, l'élargissement produit par un champ de 0,1 V/cm à $n = 100$ est d'environ 3,8GHz (on utilise la formule V.13 qui donne la valeur de l'écart

en énergie entre les raies extrêmes d'un multiplet Stark). C'est l'ordre de grandeur des largeurs de raies que nous obtenons ici et vraisemblablement il subsiste dans la zone d'interaction un champ parasite qui peut être attribué d'une part à des charges électriques déposées sur les plaques du condensateur (film d'huile) et d'autre part au champ résiduel introduit par le multiplicateur d'électrons. La largeur spectrale propre à l'émission laser étant bien entendu beaucoup plus faible.

B) En présence d'un champ électrique statique

Pour les états de Rydberg, la structure fine étant indiscernable, l'application d'un champ électrique minime suffit à mettre en évidence l'effet Stark linéaire. En outre, le champ électrique d'ionisation est relativement peu élevé (environ 600 V/cm à $n = 33$) si bien qu'on peut aisément appliquer à l'atome un champ F que l'on peut considérer comme intense ; dans des conditions de champ intense, l'effet Stark n'est plus linéaire et il faut pour le décrire employer des termes d'ordre supérieur en F .

Nous nous sommes placés dans le même schéma d'excitation que celui décrit précédemment (§ A). Pour des raisons de commodité (nombre de raies Stark pas trop élevé, résolution du système, non recouvrement des multiplets, dynamique de balayage du laser...), nous avons choisi d'étudier en détail le multiplet Stark correspondant à $n = 33$ à une valeur

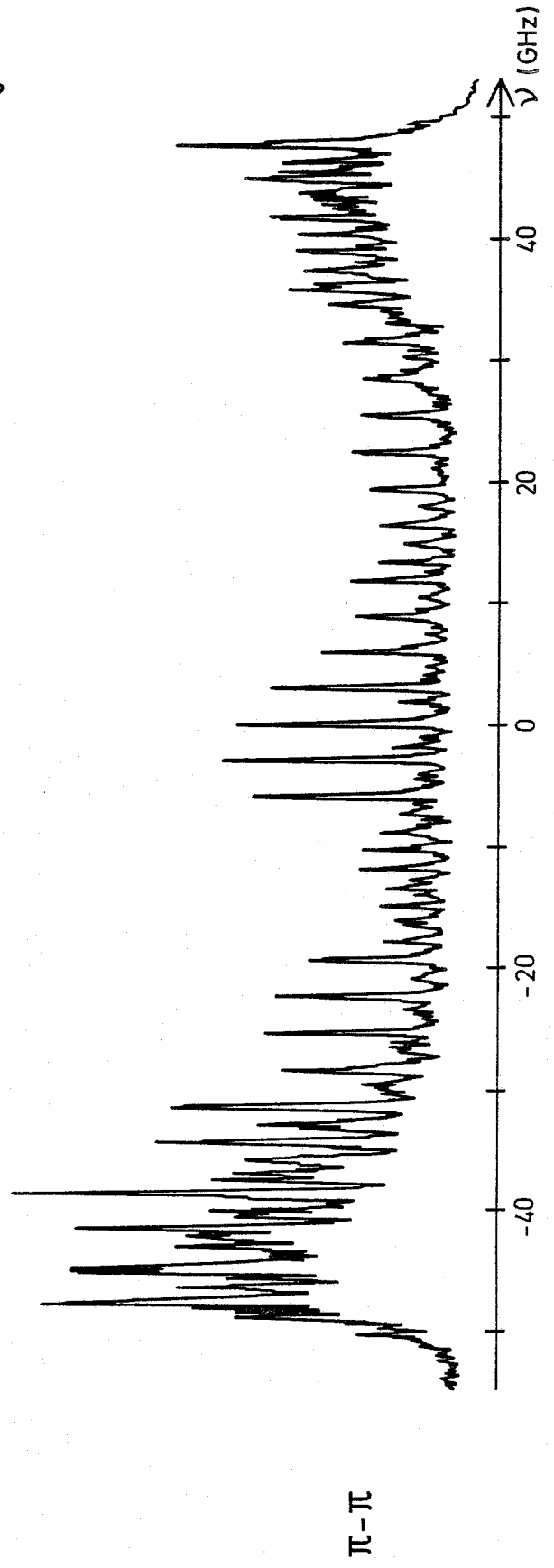
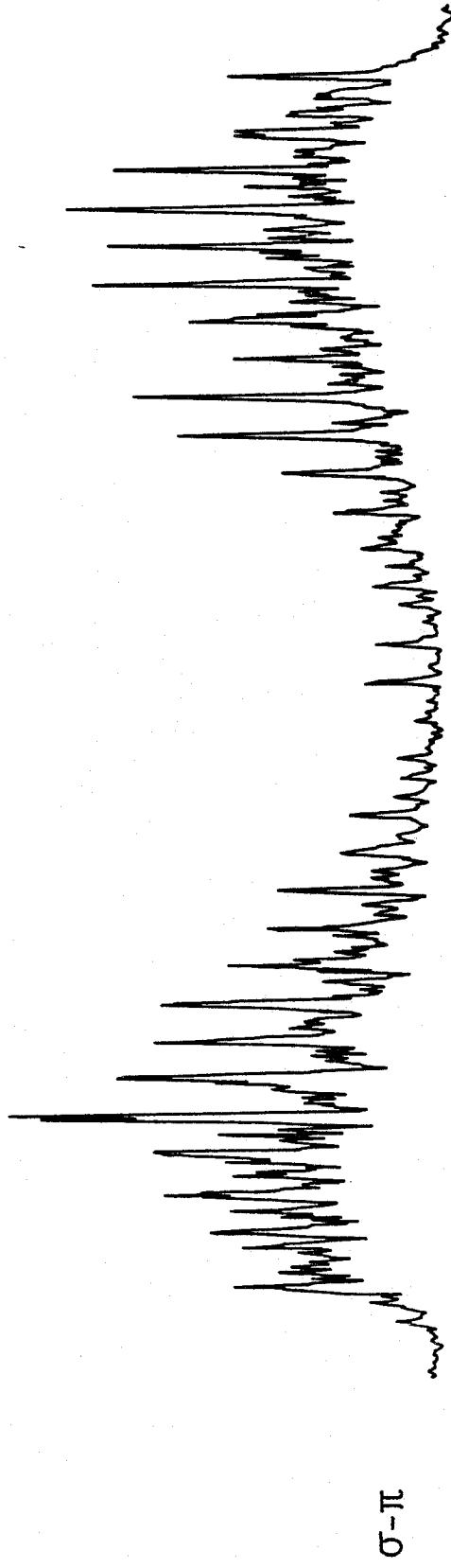
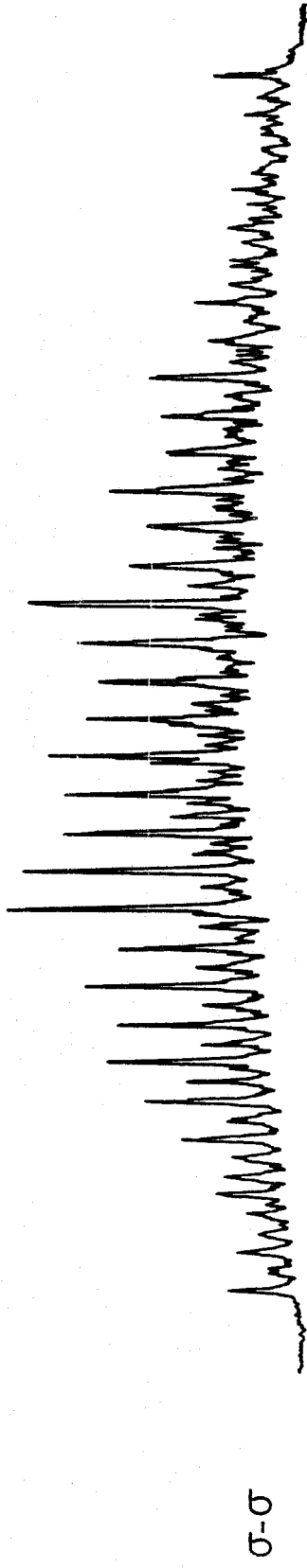
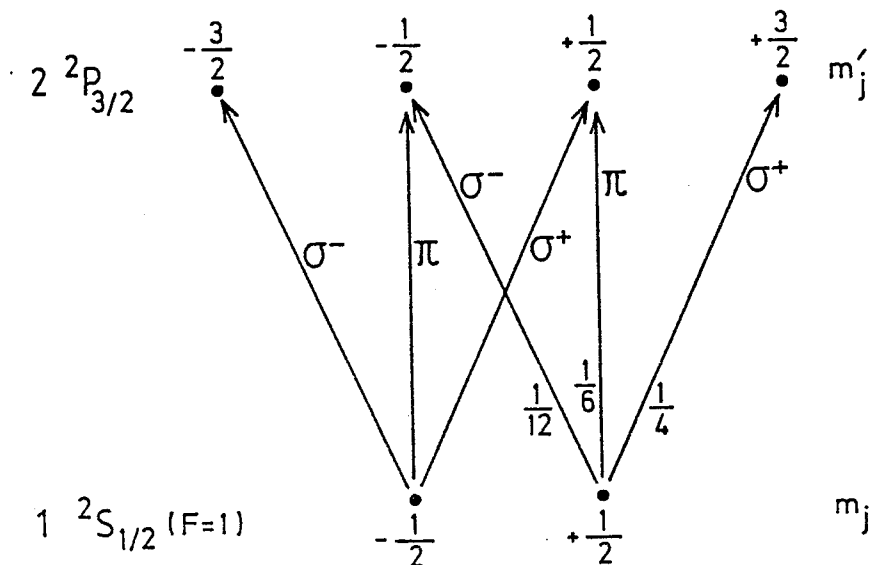


FIGURE 60

du champ électrique $F = 23,6 \text{ V/cm}$. Pour la détection, il faut rajouter au champ continu, qui est appliqué pendant l'impulsion laser, une impulsion de champ d'intensité suffisamment grande pour ioniser tous les niveaux du multiplet ; les niveaux les plus rouges s'ionisant plus facilement. Dans notre cas, une impulsion de champ de 1500 V/cm nous a permis d'analyser entièrement le multiplet.

Des enregistrements typiques sont présentés à la figure (60). Ces trois spectres correspondent à des excitations suivant des polarisations différentes des deux étages d'excitation : par exemple : $\sigma - \pi$ correspond à une excitation σ (polarisation perpendiculaire au champ électrique) du 1^{er} étage U.V. lointain et à une excitation π (polarisation parallèle au champ électrique du 2^{ème} étage U.V.).

Les niveaux que l'on peut ainsi atteindre avec le premier étage d'excitation laser sont résumés sur la figure ci-dessous :

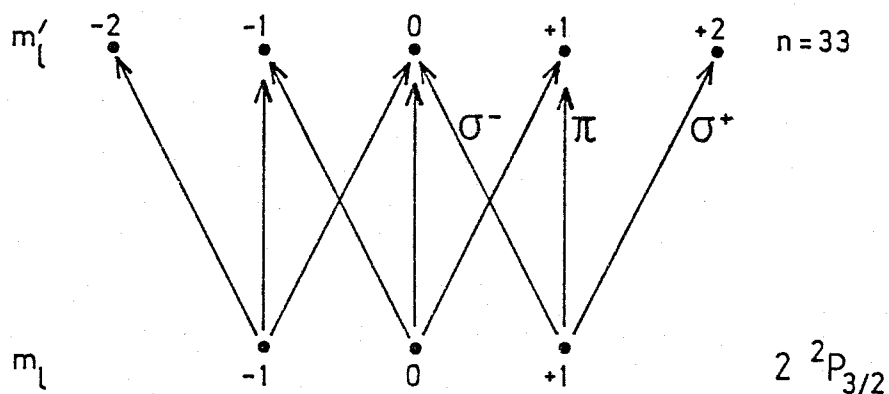


Le champ électrique appliqué, de 23,6 V, est considéré comme très faible puisque les déplacements Stark qu'il occasionne sont petits devant la structure fine et le déplacement de Lamb (voir par exemple la figure 58a). Le calcul des probabilités de transition s'effectue donc en couplage L-S et fait intervenir des transitions entre m_j . Le niveau $2^2P_{3/2}$ - que l'on a utilisé comme niveau intermédiaire parce qu'il est le plus intense - comporte par ailleurs un mélange de $m_\ell = 0$ et $|m_\ell| = 1$:

. En polarisation π , l'excitation des seuls états de $|m'_j| = \frac{1}{2}$ conduit à une proportion de $2/3$ d'états $m_\ell = 0$ et $1/3$ d'états $|m_\ell| = 1$ sur le niveau $2^2P_{3/2}$.

. En polarisation σ , compte-tenu des probabilités de transition vers les états de $|m'_j| = \frac{1}{2}$ et $|m'_j| = \frac{3}{2}$, on a une proportion globale de $1/6$ sur les états de $m_\ell = 0$ et de $5/6$ sur les états de $|m_\ell| = 1$.

Sur le deuxième étage laser, m_ℓ peut cette fois-ci être considéré comme un bon nombre quantique (voir paragraphe V.2.1). Les transitions possibles sont donc les suivantes :



Les spectres de la figure (60) font donc apparaître un enchevêtrement de raies correspondant à $m_\ell = 0$ et $|m_\ell| = 1$ suivant les polarisations σ - π et π - π , et à $|m_\ell| = 1$, $|m_\ell| = 0$; 2 suivant la polarisation σ - σ .

Les raies de $m_\ell = 0$ ou 2 et $m_\ell = 1$ s'intercalent de telle sorte qu'une raie Stark de $m_\ell = 0$ ou 2 est au centre de deux raies de $m_\ell = 1$ et inversement. Ceci est décrit par la relation entre les nombres quantiques paraboliques :

$$n = n_1 + n_2 + |m_\ell| + 1.$$

L'effet Stark étant linéaire, pour $m_\ell = 0$, $n_1 + n_2 = n-1$, les niveaux se répartissent symétriquement par rapport à la raie sans champ avec une raie au centre du multiplet si n est pair, et une raie de part et d'autre du centre si n est impair. Pour $m_\ell = 1$, la disposition est inversée.

On vérifie par ailleurs que l'écart entre des raies de même m_ℓ est constant à l'intérieur du multiplet, et est en accord avec les valeurs théoriques aux erreurs de calibration près.

La répartition des intensités en fonction du nombre quantique parabolique s'explique de façon moins immédiate. L'élément de matrice donnant les probabilités de transitions entre le niveau $2P_{3/2}$ et un niveau Stark fait intervenir des vecteurs de l'état $2P_{3/2}$ dans une base sphérique et des vecteurs de l'état $n = 33$ dans une base parabolique ; il s'écrit

$$|\langle 2, \ell, m_\ell | \vec{r} | n, k, m \rangle|^2$$

où $k = n_2 - n_1$ est le nombre quantique parabolique.

Le développement des vecteurs d'une base parabolique sur une base sphérique se fait en utilisant des coefficients de Clebsch-Gordan $C(nk, \ell m)$: [101]

$$|nkm\rangle = \sum_{\ell=|m|}^{n-1} |n\ell m\rangle C(nk, \ell m)$$

$$\text{où } C(nk, \ell m) = (-1)^m (2\ell+1)^{1/2} \begin{pmatrix} \frac{n-1}{2} & \frac{n-1}{2} & \ell \\ \frac{m-k}{2} & \frac{m+k}{2} & -m \end{pmatrix}$$

Pour la transition de $2p$ vers $n = 33$ on a donc

$$\begin{aligned} \langle 2 \ 1 \ m_{\ell} | T_q^{(1)} | n\ell m \rangle = \\ (-1)^{1-m_{\ell}} \begin{pmatrix} 1 & 1 & \ell \\ -m_{\ell} & q & m \end{pmatrix} \langle 2 \ 1 || T^1 || n\ell \rangle \end{aligned}$$

où $T_q^{(1)}$ est l'opérateur tensoriel de rang 1 associé à \vec{r} et q est associé au mode d'excitation : $q = 0$ en excitation π , $q = \pm 1$ en excitation σ^{\mp} .

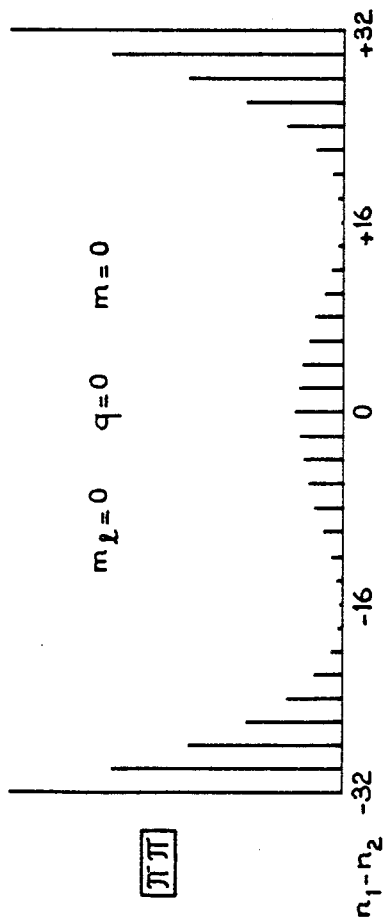
Finalement, l'amplitude de la probabilité de transition s'écrit :

$$\begin{aligned} \langle 2 \ 1 \ m_{\ell} | T_q^{(1)} | nkm \rangle = \sum_{\ell=|m|}^{n-1} (-1)^{1-m_{\ell}} (-1)^m (2\ell+1)^{1/2} \\ \begin{pmatrix} 1 & 1 & \ell \\ -m_{\ell} & q & m \end{pmatrix} \begin{pmatrix} \frac{n-1}{2} & \frac{n-1}{2} & \ell \\ \frac{m-k}{2} & \frac{m+k}{2} & -m \end{pmatrix} \langle 2 \ 1 || T^{(1)} || n\ell \rangle \end{aligned}$$

où les éléments $\langle 2 \ 1 || T^{(1)} || n\ell \rangle$ sont proportionnels aux intégrales radiales $R_{21}^{n\ell}$ qui peuvent être calculées à partir des formules établies par Gordon [102,86].

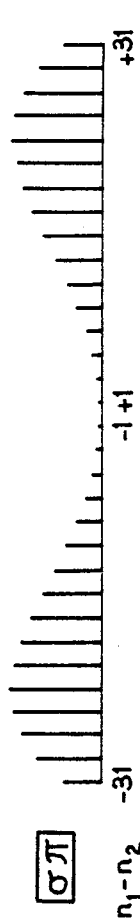
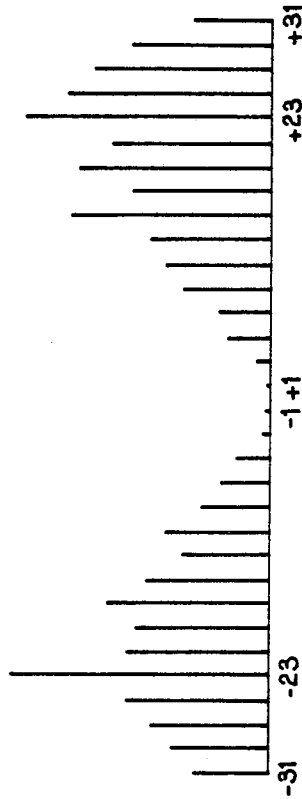
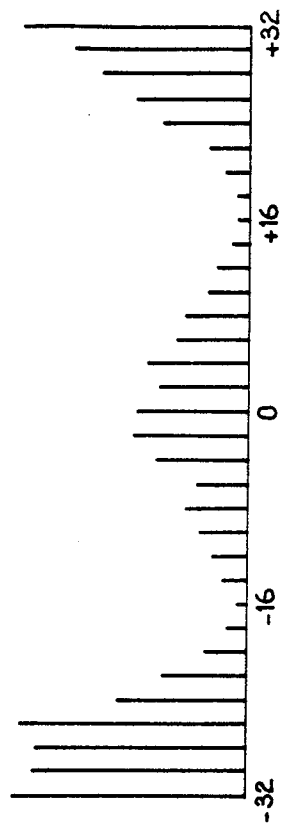
Spectres théoriques

$1\Delta \rightarrow 2P_{3/2} \rightarrow n=33$



Moyenne des Spectres expérimentaux

$F = 23,6 \text{ V/cm}$



$m_l = 1 \quad q = \pm 1 \quad m = 0,2$

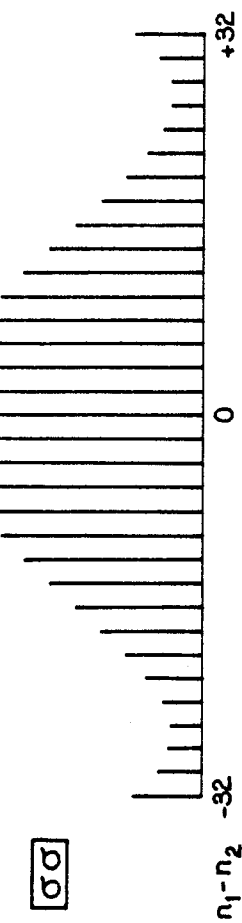


FIGURE 61

Pour chaque chemin d'excitation, les intensités théoriques des raies ont été calculées et portées figure (61).

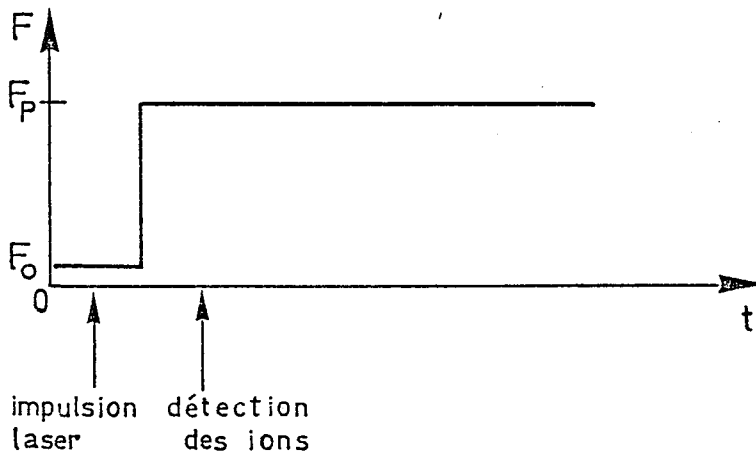
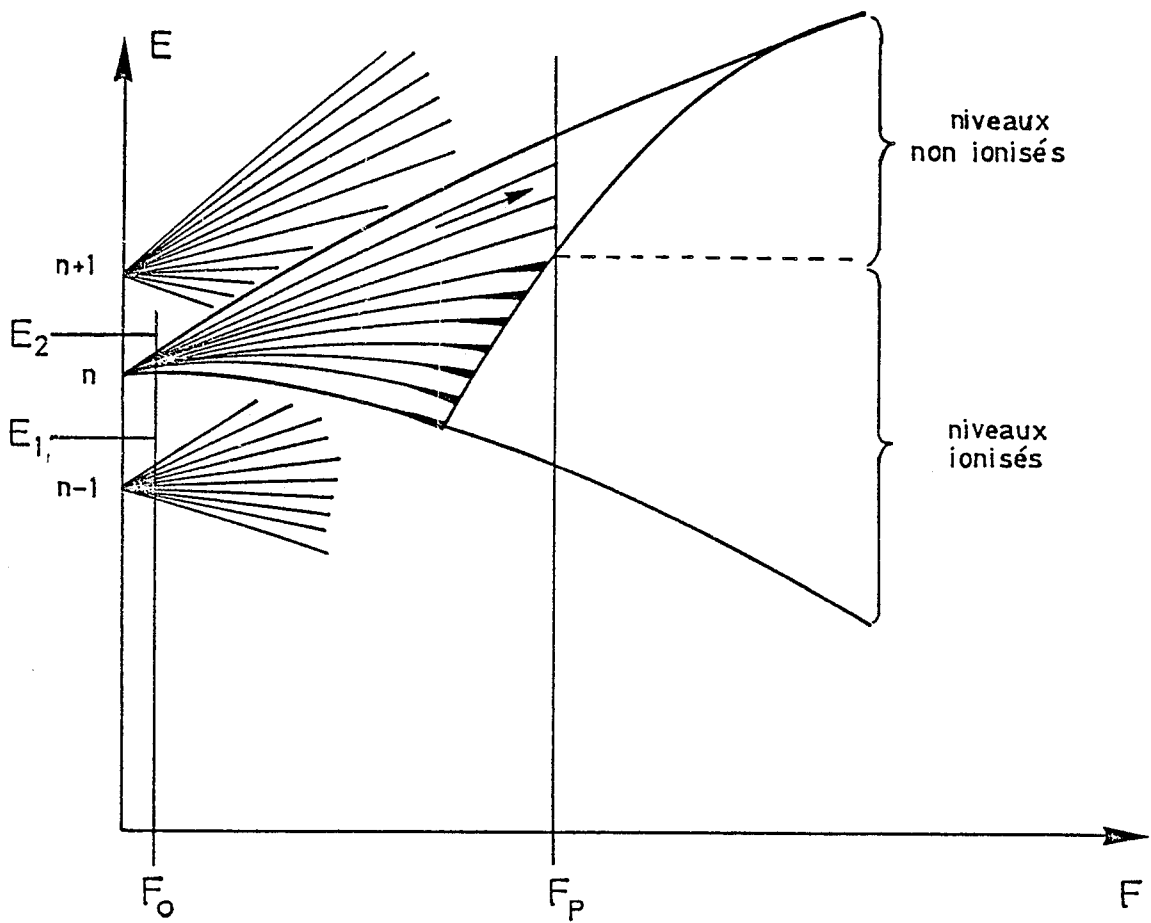
* En excitation π - π ($m_\ell=0$, $q=0$, $m=0$) : on note un maximum pour $k = 0$ et deux minima pour $k = \pm 16$. Ces minima correspondent à des interférences entre les intégrales radiales R_{21}^{330} et R_{21}^{332} .

* En excitation σ - π ($m_\ell=1$, $q=0$, $m=1$) : il y a un minimum en $k = 0$ et deux maxima en $k = \pm 23$ pour les mêmes raisons que ci-dessus.

* En excitation σ - σ ($m_\ell=1$, $q=1$, $m=0$) ou ($m_\ell=1$, $q=1$, $m=2$): il y a deux chemins d'excitation possibles puisqu'on ne distingue pas entre σ^+ et σ^- . Ces deux chemins indépendants n'interfèrent pas entre eux et on ajoute les intensités des probabilités de transition pour obtenir une représentation comparable avec les spectres expérimentaux. L'enveloppe des raies présente un maximum en $k = 0$. Les raies en $k = \pm 32$ n'existent que pour le chemin correspondant à $m = 0$. (cf. relation V.11b).

Hormis le fait qu'il y a un mélange entre les m_ℓ , comme nous l'avons déjà signalé, les raies des spectres expérimentaux ont des intensités tout à fait comparables à celles des prévisions théoriques. Il existe cependant une sorte de "tassement" des raies de plus forte intensité ; la cause de ce tassement a pour origine une saturation sur le deuxième étage d'excitation. Ceci est corroboré par le fait que le fond prend une importance considérable au niveau des raies

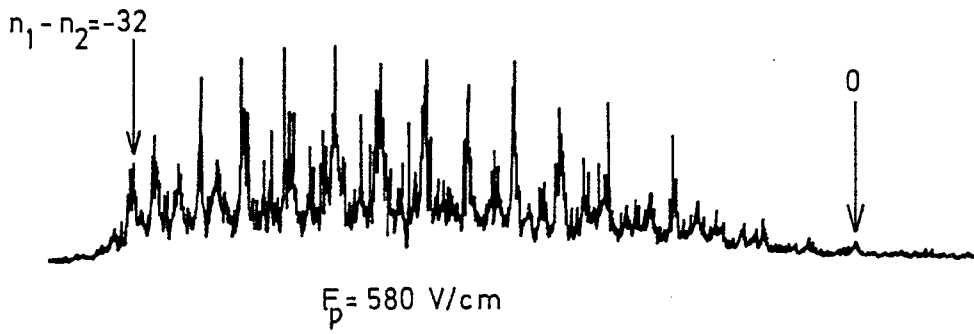
intenses. Pratiquement, il était difficile de faire apparaître les raies les plus faibles du spectre (si on diminuait beaucoup l'excitation) sans les noyer dans le bruit. Cet effet est particulièrement sensible en excitation π - π où le contraste est très grand entre raies faibles et raies fortes (cf. figure 60).



V.3.3. Ionisation des niveaux Stark

Nous avons pu expérimentalement mettre en évidence l'ionisation individuelle de chaque niveau Stark pour $n = 33$. Comme nous l'avons fait remarquer au paragraphe V.2.3, ceci est possible puisque les niveaux issus de multiplets différents se croisent sans se perturber. Nous avons donc opéré en suivant le schéma page 187 :

En plaçant les atomes d'hydrogène dans un champ continu F_0 tel que deux multiplets Stark successifs ne s'enchevêtrent pas, un balayage du laser entre les énergies E_1 et E_2 doit permettre de faire le spectre Stark du niveau n et d'identifier sans ambiguïté les raies auxquelles on attribue un nombre quantique parabolique $(n_1 - n_2)$. Si on applique, juste après l'impulsion laser, une impulsion de champ électrique, d'intensité F_p variable, aux atomes portés dans un niveau Stark, on est capable d'explorer la limite d'ionisation parabolique en attribuant à chaque niveau $(n_1 - n_2)$ une valeur de champ critique F_{pc} . La figure (62) est un exemple de spectres réalisés dans ces conditions avec un champ continu $F_0 = 23,6$ V/cm et des champs pulsés $F_p = 580$ V/cm et $F_p = 680$ V/cm. On voit très bien que ces valeurs de F_p correspondent au champ critique pour un niveau de $(n_1 - n_2)$ déter-



$n = 33$
 $F_0 = 23,6 \text{ V/cm}$

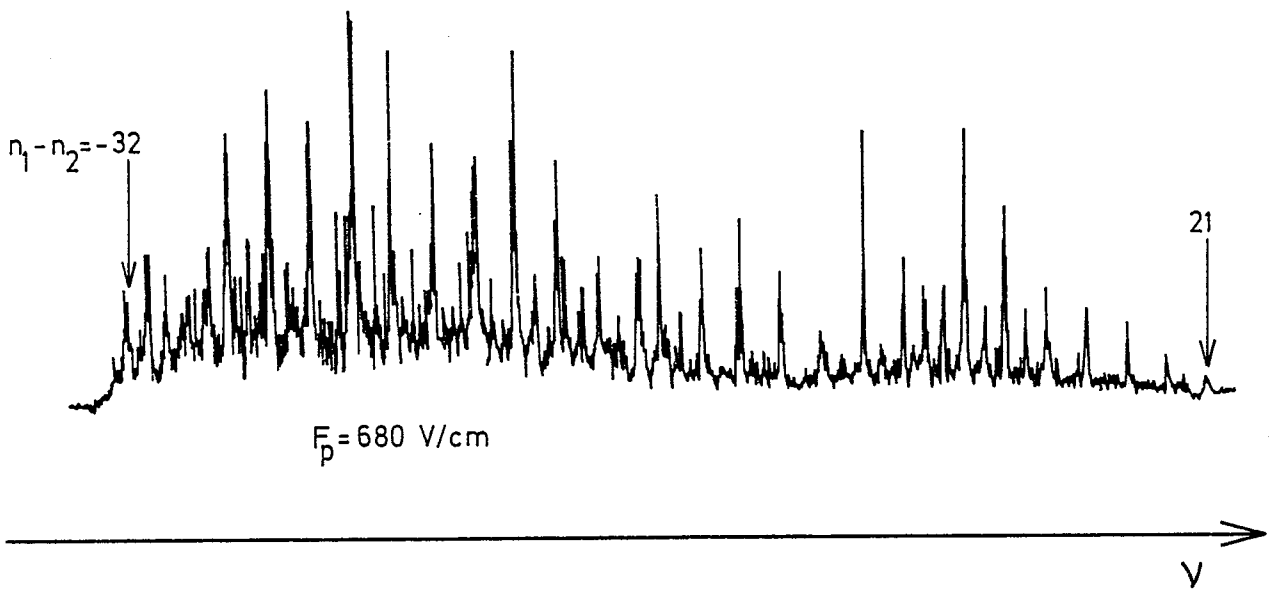


FIGURE 62

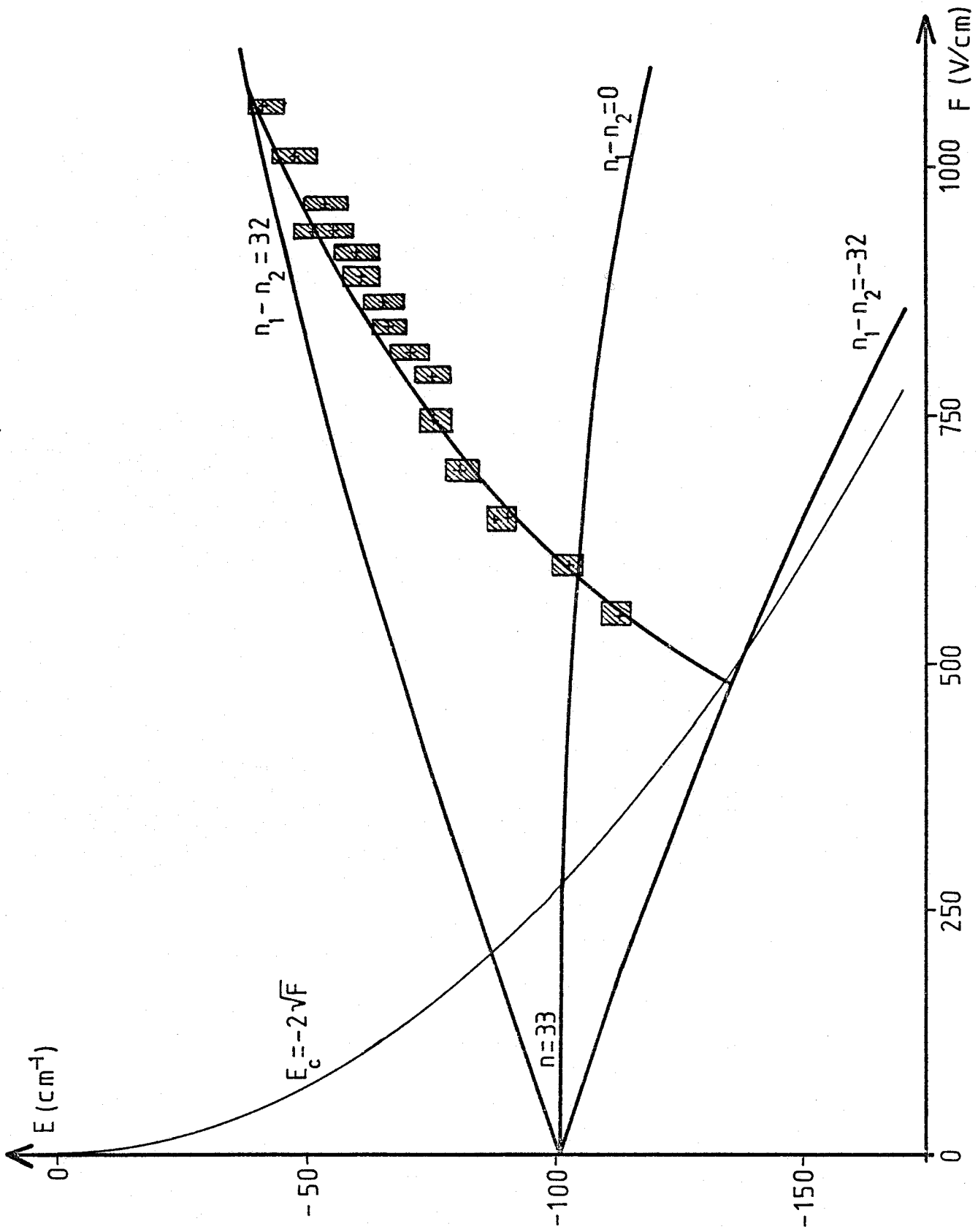


FIGURE 63 - seuils d'ionisation par champ électrique des niveaux Stark

miné, ici respectivement $(n_1 - n_2) = 0$ et $(n_1 - n_2) = 21$.

La figure (63) représente les points expérimentaux obtenus avec cette méthode. On a tracé la courbe donnant la limite d'ionisation parabolique des états Stark pour une vitesse d'ionisation $\Gamma = 5 \cdot 10^5 \text{ s}^{-1}$; cette courbe a été calculée à l'aide de la formule V.14 établie par Damburg et Kolesov. On note le bon accord entre l'allure de la courbe et la position des points expérimentaux ; cependant, deux séries de mesures ont été nécessaires pour recueillir tous les points, et on remarque un léger décalage entre les deux séries qui est vraisemblablement dû à des critères d'évaluation différents pour le champ d'ionisation (nombre d'ions déterminant le seuil d'ionisation).

CONCLUSION

CONCLUSION

Ce travail représente, pour une part, une contribution technique à l'élaboration d'un laser à très haute résolution dans l'ultra-violet lointain, et, pour une autre part, une contribution technique et expérimentale à l'étude de l'atome d'hydrogène en présence d'un champ électrique.

La partie instrumentale aussi bien que la partie expérimentale constituent un apport nouveau pour la spectroscopie atomique. Jusqu'à présent, aucun système laser ne cumulait dans l'ultraviolet lointain, des qualités telles que: grande finesse spectrale, très bonne stabilité, dynamique de balayage importante et puissance élevée. Les expériences effectuées sur l'atome d'hydrogène ne pouvaient l'être qu'avec un système de ce type, c'est pourquoi ils sont complètement originaux et se situent en bonne place parmi les résultats obtenus ailleurs.

Le plan adopté dans ce mémoire reflète la démarche suivie pour atteindre l'objectif fixé c'est-à-dire, faire la spectroscopie de l'atome d'hydrogène à haute résolution en présence d'un champ électrique :

- 1) réalisation de la source monomode dans le visible,

- 2) extension au domaine de l'ultra-violet lointain (Lyman α) par conversion de fréquence (doublage puis triplage),
- 3) réalisation d'un jet d'hydrogène atomique,
- 4) étude expérimentale.

J'ai personnellement élaboré et mis au point la totalité de la partie instrumentale et ma participation a été essentielle également au niveau de l'expérience de physique elle-même. Il convient de résumer, pour conclure, toutes les caractéristiques instrumentales et tous les résultats expérimentaux.

La partie technique a consisté à réaliser, en premier lieu, une source lumineuse pulsée, monomode et accordable en longueur d'onde dans la partie visible du spectre, à la longueur d'onde de 730 nanomètres. Le "cœur" du montage est une cavité en anneau à double excitation dont le mode de fonctionnement est analogue à celui d'un système laser à injection à deux cavités distinctes. Dans notre montage, une excitation continue est réalisée sur un jet de colorant (Pyridine 2) par un laser à argon ionisé, et une excitation pulsée sur une cellule intracavité par une faible fraction du faisceau d'un laser à YAG doublé en fréquence.

On a vérifié que les caractéristiques spectrales des impulsions lumineuses émises par cette cavité sont les mêmes que celles du rayonnement continu qui en est issu, excepté pour la largeur spectrale. La dispersion en fréquence, d'un

coup laser à l'autre, élargit peu le profil spectral dont la limite est de toute façon imposée par la transformée de Fourier de l'impulsion : cette caractéristique n'est que rarement réalisée dans les autres systèmes monomodes fonctionnant par impulsions.

Le choix d'une cavité en anneau avait été motivé par des considérations d'intensité dans la cavité et de renvoi de la fluorescence vers les amplificateurs (voir § II.1). Ce choix nous a posé des difficultés particulières pour la stabilisation du mode laser du fait de l'extinction du laser après l'impulsion d'excitation. Bien que le problème ait été résolu, l'utilisation d'une cavité linéaire nous aurait vraisemblablement causé moins de soucis d'asservissement.

L'intensité des impulsions à la sortie de la cavité est assez forte pour qu'une amplification soit ensuite effectuée dans de très bonnes conditions de rapport signal sur bruit. Avec quatre étages d'amplification, la puissance crête des impulsions lumineuses atteint 5 mégawatts dans un mode spatial proche d'un mode TEM_{00} .

Ensuite par doublage de fréquence dans un cristal de KDP et triplage de fréquence dans un mélange de gaz rares (krypton et argon) nous avons obtenu un rayonnement cohérent à la longueur d'onde de Lyman α (121,6 nanomètres). Une étude systématique nous a permis de caractériser l'émission lumineuse à cette longueur d'onde en fonction des paramètres du triplage de fréquence. Les caractéristiques les plus remarquables sont les suivantes :

- La puissance crête atteint la dizaine de watts avec des impulsions d'une durée de 8 nanosecondes.

- La fréquence est continuellement accordable sur un intervalle spectral supérieur à 900 GHz (30 cm^{-1}).

- Le profil spectral de l'émission a une largeur à mi-hauteur inférieure à 350 MHz ce qui conduit à une résolution encore jamais atteinte à cette longueur d'onde.

- La stabilité à court terme est de ± 18 MHz et la dérive est inférieure à 30 MHz par heure. Si nécessaire, ces valeurs pourraient être améliorées de près d'un ordre de grandeur avec un sigmamètre d'asservissement bloqué en fréquence au moyen d'un laser hélium-néon asservi sur une raie d'absorption de l'iode.

Dans certaines conditions, l'utilisation d'un laser tel que celui-ci peut être préférable dans l'ultra-violet lointain à celle du rayonnement synchrotron.

Ce système laser constitue le premier étage d'excitation de l'atome d'hydrogène (transition $1s \rightarrow 2p$). Le deuxième étage d'excitation ($2p \rightarrow n$) est effectué par un système du même type, déjà existant, et que nous avons synchronisé sur le premier avec une précision de 2 nanosecondes ; la longueur d'onde de fonctionnement est ici de 365 nanomètres environ.

Nous avons enfin réalisé un jet d'hydrogène atomique. L'hydrogène moléculaire, préalablement filtré par une paroi en argent-palladium est ensuite dissocié par une excitation

radio-fréquence dans une cellule refroidie à l'eau. Les caractéristiques de ce jet ont été déterminées grâce à un détecteur d'hydrogène atomique à oxydes métalliques utilisé habituellement comme détecteur de température.

La collimation du jet, obtenue avec un diaphragme "écorceur" de faible diamètre (0,5 millimètre), a permis d'éliminer les diffusions atomiques et d'enregistrer des profils de raies symétriques et pratiquement exempts de fond Doppler. La largeur Doppler résiduelle a été réduite à une valeur n'excédant pas celle du profil spectral du laser.

Les résultats expérimentaux originaux obtenus avec cet ensemble instrumental, grâce à ses propriétés spécifiques de résolution sont les suivants : [103]

- Spectroscopie de la raie Lyman α mettant clairement en évidence aussi bien la structure fine du niveau 2p (11 GHz) que la structure hyperfine du niveau fondamental 1s (1,42 GHz).

- Enregistrements de structures Stark sur le niveau $n = 2$ avec des champs électriques de faible intensité allant de 0 à 4500 V.cm^{-1} . Ces enregistrements montrent en particulier les effets de mélange des fonctions d'ondes p et s par l'apparition du niveau 2s en champ faible (à partir de 200 V.cm^{-1}). Les écarts observés des composantes Stark en fonction du champ électrique appliqué sont en parfait accord avec la description théorique.

- Enregistrement de niveaux de Rydberg de n élevé ($n \approx 100$).

- Enregistrement de la structure Stark d'un niveau de Rydberg ($n = 33$). Etude de l'intensité des raies du multiplet en fonction des polarisations respectives sur les deux étages d'excitation.

- Détermination des seuils d'ionisation par champ électrique des niveaux Stark en fonction du nombre quantique parabolique pour $n = 33$.

La présente étude expérimentale doit être étendue prochainement à une étude en présence de champs magnétique ou électrique intenses. L'adaptation du jet d'hydrogène atomique sur un système d'aimant supraconducteur pouvant fournir un champ magnétique de près de 7 teslas est en cours de réalisation. Le montage de triplage de fréquence pour l'excitation laser du premier étage (Lyman α) va également être adapté pour cette nouvelle expérience qui complètera ainsi une expérience sur l'atome de lithium qui vient d'être menée à son terme [11 à 13]. La spectroscopie à très haute résolution pourrait aider à mieux comprendre le comportement de l'atome d'hydrogène en présence de champs intenses et peut-être à en donner une description exacte.

Les résultats obtenus sur cette expérience montrent que, dans les grandes lignes, les choix qui ont été faits étaient bons et que malgré la complexité du montage, l'utilisation simultanée de tous les systèmes nécessaires au fonctionnement de l'ensemble n'entraîne pas de difficulté particulière.

Enfin, les perspectives de développement offertes par le système laser sont multiples et dues essentiellement à la facilité d'adapter des sources d'excitation variées ; parmi celles-ci, nous pouvons citer :

- extension des longueurs d'ondes d'émission à tout le spectre visible, ultra-violet et ultra-violet lointain en choisissant le colorant et les milieux non-linéaires adaptés ;

- utilisation d'une source fonctionnant avec des impulsions plus longues dans le but d'accroître encore la résolution ;

- utilisation d'une source pulsée dont le taux de répétition soit beaucoup plus élevé (laser à vapeur de cuivre par exemple).

REFERENCES

REFERENCES BIBLIOGRAPHIQUES

- [1] Rita MAHON, T.J. Mc ILRATH, David W. KOOPMAN - Appl. Phys Lett. 33 (4), 305 (1978)
- [2] T.J. Mc KEE, B.P. STOICHEFF, Stephen C. WALLACE - Opt. Lett., Vol. 3, n° 6, 207 (1978)
- [3] David COTTER - Opt. Commun., Vol. 31, n° 3, 397 (1979)
- [4] R. WALLENSTEIN - Opt. Commun., Vol. 33, n° 1, 119 (1980)
- [5] Rita MAHON, YUN MUI YIU - Opt. Lett., Vol. 5, n° 7, 279 (1980)
- [6] S. FENEUILLE, S. LIBERMAN, J. PINARD, P. JACQUINOT, C.R. Acad. Sci. Paris, 284B, 291 (1977)
- [7] H.T. DUONG, J. PINARD, J.L. VIALLE - Opt. Commun., Vol. 22, n° 1, 79 (1977)
- [8] S. FENEUILLE, S. LIBERMAN, J. PINARD et A. TALEB - Phys. Rev. Lett., 42, n° 21, 1404 (1979)
- [9] S. FENEUILLE, S. LIBERMAN, E. LUC-KOENIG, J. PINARD et A. TALEB - J. Phys. B : At. Mol. Phys., 15, 1205 (1982)
- [10] id - Phys. Rev. A, 25, n° 5, 2853 (1982)
- [11] P. CACCIANI, E. LUC-KOENIG, J. PINARD, C. THOMAS, S. LIBERMAN - Phys. Rev. Lett., 56, n° 11, 1124 (1986)
- [12] id - Phys. Rev. Lett., 56, n° 14, 1467 (1986)
- [13] id - J. Phys. B : At. Mol. Phys., 19, L519 (1986)
- [14] WALLACE L. GLAB, MUNIR H. NAYFEH - Opt. Lett., Vol. 8, n° 1, 30 (1983)

- [15a] F. BIRABEN, L. JULIEN - Opt. Commun., Vol. 53, n° 5, 319 (1985)
- [15b] T.W. HANSCH, I.S. SHAHIN, A.L. SCHAWLOW - Nature (Physical Sciences), Vol. 235, 63 (1972)
- [16] Gary C. BJORKLUND, Richard R. FREEMAN, Ralph H. STORZ - Opt. Commun., Vol. 31, n° 1, 47 (1979)
- [17] H. ZACHARIAS, H. ROTTKE, J. DANON, K.H. WELGE - Opt. Commun., Vol. 37, n° 1, 15 (1981)
- [18] J. PINARD, S. LIBERMAN - Opt. Commun., 20, 344 (1977)
- [19] S. LIBERMAN, L. CABARET, J. PINARD, A. TALEB - Revue du CETHEDC, NS83-2, 37 (1983)
- [20] Frank S. TOMKINS, Rita MAHON - Opt. Lett., Vol. 7, n° 7, 304 (1982)
- [21] W. JAMROZ, P.E. LA ROQUE, B.P. STOICHEFF - Opt. Lett., Vol. 7, n° 12, 617 (1982)
- [22] R. HILBIG, R. WALLENSTEIN - Appl. Opt., Vol. 21, 913 (1982)
- [23] id - IEEE J. Quantum Electron., Vol. QE-17, n° 8, 1586 (1981)
- [24] R. WALLENSTEIN, H. ZACHARIAS - Opt. Commun., Vol. 32, n° 3, 429 (1980)
- [25a] T.W. HANSCH, I.S. SHAHIN, A.L. SCHAWLOW - Phys. Rev. Lett., Vol. 27, 707 (1971)
- [25b] Y.H. MEYER - Opt. Commun., Vol. 39, n° 1,2, 110 (1981)
- [26] M.G. LITTMAN, Opt. Lett., Vol. 3, n° 4, 138 (1978)
- [27] id - Appl. Opt., Vol. 23, n° 24, 4465 (1984)
- [28] CHI SHENG SHOU - Appl. Opt., Vol. 23, n° 17, 2879 (1984)
- [29] F. TREHIN, G. GRYNBERG, B. CAGNAC - Revue de Physique Appliquée, tome 13, 307 (1978)

- [30] P. VERKERK, D. GRAND-CLEMENT, F. TREHIN, G. GRYNBERG, Opt. Commun., Vol. 58, n° 6, 413 (1986)
- [31] J.E. BJORKHOLM, H.G. DANIELMEYER, Appl. Phys. Lett., Vol. 15, 171 (1969)
- [32] B. COUILLAUD, A. DUCASSE, E. FREYSZ, IEEE J. Quantum Electron., Vol. QE 20, n° 3, 310 (1984)
- [33] L. CABARET - mémoire d'ingénieur CNAM - Spécialité "Eclairage - Optique - Image" (1982)
- [34] P. JUNCAR, J. PINARD - Opt. Commun., Vol. 14, 438 (1975)
- [35] P. JUNCAR - Thèse de Doctorat d'Etat, Université de Paris-Sud (1982)
- [36] B.B. SNAVELY, O.G. PETERSON, IEEE J. Quantum Electron. 4, 540 (1968)
- [37] O.G. PETERSON, J.P. WEBB, W.C. Mc COLGIN - J. Appl. Phys., Vol. 42, n° 5, 1917 (1971)
- [38] U. GANIEL, A. HARDY, G. NEUMANN, D. TREVES, IEEE J. Quantum Electron., Vol. QE 11, n° 11, 881 (1975)
- [39] U. GANIEL, A. HARDY, D. TREVES, IEEE J. Quantum Electron., Vol. QE 12, n° 11 (1976)
- [40a] A.L. BLOOM, J. Opt. Soc. Am., Vol. 64, 447 (1974)
- [40b] W.G. SCHWEITZER, E.G. KESSLER, R.D. DESLATTES, H.P. LAYER, J.R. WHETSTONE - Appl. Opt., Vol. 12, 2927 (1973)
- [41] M.F. MOUSSELLY - Thèse de Docteur-Ingénieur, Université de Paris-Sud (1982)
- [42] H. KOGELNIK, T. LI - Appl. Opt., Vol. 5, n° 10, 1550 (1966)
- [43] H.W. KOGELNIK, E.P. IPPEN, A. DIENES, C.W. SHANK - IEEE J. Quantum Electron., Vol. QE 8, n° 3, 373 (1972)
- [44] D.M. KANE, M.H. DUNN - Opt. Commun., Vol. 48, n° 5, 295 (1984)

- [45] F. ZERNIKE - J. Opt. Soc. Am., Vol. 54, n° 10, 1215 (1964)
- [46] J.M. HALBOUT, S. BLIT, W. DONALDSON, C.L. TANG - IEEE J. Quantum Electron., Vol. QE 15, n° 10, 1176 (1979)
- [47] C. CASSIDY, J.M. HALBOUT, W. DONALDSON, C.L. TANG - Opt. Commun., Vol. 29, 243 (1979)
- [48] H. EGGER, R.T. HAWKINS, J. BOKOR, H. PUMMER, M. ROTHSCHILD, C.K. RHODES - Opt. Lett., Vol. 5, n° 7, 282 (1980)
- [49] R. HILBIG, R. WALLENSTEIN - Opt. Commun., Vol. 44, n° 4, 283 (1983)
- [50] J.C. WHITE - Opt. Lett., Vol. 9, n° 2, 38 (1984)
- [51] R. HILBIG, A. LAGO, R. WALLENSTEIN - Opt. Commun., Vol. 49, n° 4, 297 (1984)
- [52] L. HELLNER, J. LUKASIK - Opt. Commun. - Vol. 51, n° 5, 347 (1984)
- [53] F.S. TOMKINS, Rita MAHON - Opt. Lett., Vol. 6, n° 4, 179 (1981)
- [54] J. BOKOR, R.R. FREEMAN, R.L. PANOCK, J.C. WHITE - Opt. Lett., Vol. 6, n° 4, 182 (1981)
- [55] J.A. ARMSTRONG, N. BLOEMBERGEN, J. DUCUING, P.S. PERSHAN - Phys. Rev., Vol. 127, n° 6, 1918 (1962)
- [56] N. BLOEMBERGEN - "Non-linear Optics", Benjamin/Cummings publishings Company Inc. (1965)
- [57] D.C. HANNA, M.A. YURATICH, D. COTTER - "Non-linear Optics of free atoms and molecules", Optical Sciences, Springer Verlag, Berlin (1979)
- [58] P. FRANKEN, A.E. HILL, C.W. PETERS, G. WEINREICH - Phys. Rev. Letters, Vol. 7, 118 (1961)
- [59] W. KAISER, C.G.B. GARRET - Phys. Rev. Letters, Vol. 7, 229 (1961)

- [60] R.B. MILES, S.E. HARRIS - IEEE J. Quantum Electron., Vol. QE 9, 470 (1973)
- [61] J.F. WARD, G.H.C. NEW - Phys. Rev., Vol. 185, 57 (1966)
- [62] G.C. BJORKLUND - IEEE J. Quantum Electron., Vol. QE 11 n° 6, 287 (1975)
- [63] Rita MAHON, T.J. Mc ILRATH, V.P. MYERSCOUGH, D.W. KOOPMAN - IEEE J. Quantum Electron., Vol. QE 15, n° 6, 444 (1979)
- [64] A. DUNCANSON, R.W.H. STEVENSON - Proc. Phys. Soc. (London), Vol. 72, 1001 (1958)
- [65] V. CHANDRASCKHARAN, H. DAMANY - Appl. Opt., Vol. 8, n° 3, 671 (1969)
- [66] F.A. MODINE, R.W. MAJOR, E. SONDER - Appl. Opt., Vol. 14, n° 3, 757 (1975)
- [67] M.W. WILLIAMS, E.T. ARAKAWA - Appl. Opt., Vol. 18, n° 10, 1477 (1979)
- [68] D.F. HEATH, P.A. SACHER - Appl. Opt., Vol. 5, n° 6, 937 (1966)
- [69] K. WATANABE, F.F. MARMO, E.C.Y. INN - Phys. Rev., Vol. 91, n° 5, 1155 (1953)
- [70] T.A. CHUBB, H. FRIEDMAN - Rev. Sci. Instrum., Vol. 26, n° 5, 493 (1955)
- [71] K. WATANABE, F.M. MATSUNAGA, H. SAKAI - Appl. Opt., Vol.. 6, n° 3, 391 (1967)
- [72] T. MASUOKA, T. OSHIO - Rev. Sci. Instrum., Vol. 45, n° 8, 1012 (1974)
- [73] J.A.R. SAMPSON - "Technique of vacuum ultra-violet spectroscopy", Wiley, New York (1967)
- [74] H. ROTTKE, K.H. WELGE - Phys. Rev. A, Vol. 33, n° 1, 301 (1986)
- [75] S. DUSHMAN - "Scientific Foundations of vacuum technique", Wiley, New York (1949)

- [76] J. SLEVIN, W. STIRLING - Rev. Sci. Instrum., Vol. 52, n° 11, 1780 (1981)
- [77] W.W. MACALPINE, R.D. SCHILDKNECHT - Proc. IRE, 2099 (1959)
- [78] D. HERSCHBACH, n° spécial "Fenn", Journ. Phys. Chem., Amer. Chem. Soc., Washington D.C. (1984)
- [79] K.C. HARVEY, C. FEHRENBACH - Rev. Sci. Instrum., Vol. 54, n° 9, 1117 (1983)
- [80] Thèse LU VAN MINH (Saclay)
- [81] N.F. RAMSEY - "Molecular beams", Oxford (1985)
- [82] C. COHEN-TANNAUDJI, B. DIU, F. LALOE - "Mécanique Quantique", Tomes I et II, Herman Ed. (1973)
- [83] W.E. LAMB, R.C. RETHERFORD - Phys. Rev., Vol. 79, n° 4 (1950)
- [84] J.M. JAUCH, F. ROHRLICH - "The theory of photons and electrons", T.M.P., Springer-Verlag, Berlin (1980)
- [85] H. KOPFERMANN - "Nuclear moments", Academic Press, New York (1958)
- [86] H.A. BETHE, E.E. SALPETER - "Quantum Mechanics of One and Two-Electron Atoms", Springer-Verlag, Berlin (1957)
- [87] S.P. ALLILUEV, I.A. MALKIN - Sov. Phys. JETP, Vol. 39, n° 4, 627 (1974)
- [88] R.J. DAMBURG, V.V. KOLOSOV - J. Phys. B : Atom. Molec. Phys., Vol. 9, n° 18, 3149 (1976)
- [89] id - J. Phys. B : Atom. Molec. Phys., Vol. 11, n° 11, 1921 (1978)
- [90] id - J. Phys. B : Atom. Molec. Phys., Vol. 12, n° 16, 2637 (1979)
- [91] S. FENEUILLE, P. JACQUINOT - "Atomic Rydberg states", Advances in atomic and molecular physics, Vol. 17, Academic Press (1981)

- [92] G. LUDERS - Ann. d. Phys., Vol. 6, n° 8, 301 (1951)
- [93] C.J. FOOT, B. COUILLAUD, R.G. BEAUSOLEIL, T.W. HANSCH, Phys. Rev. Lett., Vol. 54, n° 17, 1913 (1985)
- [94] A. ROTTKE, H. ZACHARIAS - Phys. Rev. A., Vol. 33, n° 1, 736 (1986)
- [95] W.L. GLAB, M.H. NAYFEH, - Phys. Rev. A., Vol. 31, n° 1, 530 (1985)
- [96] W.L. GLAB, K. NG, DECHENG YAO, M.H. NAYFEH - Phys. Rev. A., Vol. 31, n° 6, 3677 (1985)
- [97] A. HOLLE, G. WIEBUSCH, J. MAIN, B. HAGER, H. ROTTKE, K.H. WELGE - Phys. Rev. Lett., Vol. 56, n° 24, 2594 (1986)
- [98] F. PARESCE - Appl. Opt., Vol. 14, n° 12, 2823 (1975)
- [99] P. GOHIL, D.D. BURGERS - Plasma Phys., Vol. 25, 1149 (1983)
- [100] T. KAJIWARA et coll. - Rev. Sci. Instrum., Vol. 56, n° 12, 2213 (1985)
- [101] D.R. HERRICK - Phys. Rev. A., Vol. 12, n° 5, 1949 (1975)
- [102] W. GORDON - Ann. d. Phys. (5), 2, 1031 (1929)
- [103] L. CABARET, C. DELSART, C. BLONDEL - à paraître dans Opt. Commun.
- [104] C. BLONDEL - Thèse de 3^{ème} Cycle - Université P. et M. Curie, Paris (1983)
- [105] E. LUC-KOENIG, A. BACHELIER - J. Phys. B : Atom. Molec. Phys., Vol. 13, 1743 (1979)
- [106] P.M. KOCH, D.R. MARIANI - Phys. Rev. Lett., Vol. 46, n° 19, 1275 (1981)
- [107] B. CAGNAC, J.C. PEBAY-PEYROULA - "Physique atomique", 2 tomes, Dunod Université, Paris (1975)
- [108] G.D. BOYD, A. ASHKIN, J.M. DZIEDZIC, D.A. KLEINMAN, Phys. Rev., Vol. 137, n° 4A, 1305A (1965)

- [109] F.P. SCHAFER - "Principles of Dye laser operation" in "Dye Lasers", Topics in applied physics, Vol. 1, éd. F.P. Schäfer, Springer Verlag, Berlin (1973)
- [110] G.D. BOYD, J.P. GORDON - Bell Sys. Tech. J., Vol. 40, 489 (1961)



NOM : CABARET

PRENOM : Louis

TITRE :

Réalisation d'une source laser pulsée monomode et accordable en longueur d'onde dans l'ultra-violet lointain. Contribution à l'étude de l'atome d'hydrogène en présence d'un champ électrique.

RESUME

Cette thèse rend compte de la réalisation d'un système laser pulsé monomode et accordable en longueur d'onde émettant dans l'ultra-violet lointain. A la longueur d'onde de la raie Lyman alpha de l'hydrogène, la largeur spectrale de l'émission laser est inférieure à 350 mégahertz et la dynamique de balayage continu en fréquence est supérieure à 900 gigahertz ; la puissance crête émise est d'une dizaine de watts pendant 8 nanosecondes, avec un taux de répétition de 10 hertz.

La spectroscopie de la raie Lyman alpha a été effectuée sur un jet d'hydrogène atomique doté d'une forte collimation (100). Les spectres enregistrés aussi bien en champ nul qu'en présence d'un champ électrique faible montrent une résolution encore jamais atteinte à cette longueur d'onde. A l'aide d'un second étage laser pulsé monomode, synchronisé sur le premier, nous avons enregistré la structure Stark d'un niveau de Rydberg suivant diverses combinaisons de la polarisation de la lumière sur les deux étages. Nous avons enfin déterminé les seuils d'ionisation par champ électrique de différentes composantes Stark de ce même niveau en fonction du nombre quantique parabolique.

MOTS CLES : Laser, monomode, ultra-violet lointain, Lyman alpha, hydrogène atomique, champ électrique.