

No d'enregistrement
au C.N.R.S.

THÈSE

DE DOCTORAT D'ÉTAT ES-SCIENCES PHYSIQUES

PRESENTÉE A L'UNIVERSITÉ DE PARIS-SUD

CENTRE D'ORSAY

PAR

J.-L. VIALLE

LABORATOIRE AIMÉ COTTON

C. N. R. S.

POUR OBTENIR

LE GRADE DE DOCTEUR ES-SCIENCES

SPECTROMÉTRIE LASER SUR JET D'ATOMES ALCALINS.
APPLICATIONS A L'ÉTUDE D'ISOTOPES INSTABLES A TRÈS HAUTE
RÉSOLUTION, DE LA PHOTOIONISATION ET DE L'IONISATION PAR CHAMP.

SOUTENUE LE 28.2.1980 DEVANT LA COMMISSION D'EXAMEN

| | | | | |
|-----|-------|-----------|---|--------------|
| M. | S. | FENEUILLE | : | PRÉSIDENT |
| MM. | J. L. | COJAN | } | EXAMINATEURS |
| | H. T. | DUONG | | |
| | S. | HAROCHÉ | | |
| | P. | JACQUINOT | | |
| | R. | KLAPISCH | | |

TABLE DES MATIERES

| | |
|--|----|
| <u>INTRODUCTION GENERALE</u> | 1 |
| Première Partie : <u>DETECTION des RESONANCES OPTIQUES</u> <u>par POMPAGE OPTIQUE et SELECTION MAGNE-</u> <u>TIQUE à l'AIDE d'un AIMANT à CHAMP INHOMO-</u> <u>GENE ; APPLICATION de cette METHODE à</u> <u>l'ETUDE en LIGNE des RAIES de RESONANCE</u> <u>des ISOTOPES RADIOACTIFS de SODIUM</u> | |
| 9 | |
| I - <u>RAPPELS et PRINCIPE de la METHODE</u> <u>EXPERIMENTALE</u> | |
| 11 | |
| A - INTRODUCTION | 11 |
| B - TRANSITIONS ETUDIEES | 13 |
| C - NIVEAUX d'ENERGIE de l'ETAT FONDAMENTAL dans un CHAMP MAGNETIQUE | 15 |
| D - DEFLEXION des ATOMES dans un CHAMP MAGNETIQUE INHOMOGENE | 19 |
| E - PRINCIPE de la DETECTION de la RESONANCE OPTIQUE par POMPAGE OPTIQUE SUIVI d'une DEVIATION MAGNETIQUE | 21 |
| F - POMPAGE OPTIQUE ZEEMAN et MESURE de SPIN par RESONANCE MAGNETIQUE | 24 |
| II - <u>Le DISPOSITIF EXPERIMENTAL</u> | |
| 25 | |
| A - INTRODUCTION | 25 |
| B - PRODUCTION : la CIBLE, le FOUR | 26 |

| | |
|--|----|
| C - Le JET ATOMIQUE ; la REGION d'INTERACTION avec la LUMIERE | 30 |
| D - L'AIMANT HEXAPOLAIRE | 36 |
| E - Le SPECTROMETRE de MASSE | 38 |
| F - Le LASER ; le CONTROLE de la FREQUENCE du LASER | 41 |
| III - <u>CHOIX d'un AIMANT HEXAPOLAIRE et PROPRIETES</u> | |
| <u>qui en DECOULENT</u> | 45 |
| A - DIFFERENTS TYPES de CHAMP INHOMOGENE UTILISABLE .. | 45 |
| 1 - Introduction | 45 |
| 2 - Les aimants dipolaires | 46 |
| 3 - Les aimants 2n-polaires | 50 |
| a) Calcul du champ et du gradient | 50 |
| b) n=2 champ quadrupolaire | 51 |
| c) n=3 champ hexapolaire | 53 |
| d) Comparaison des champs hexapolaire et quadrupolaire | 55 |
| B - COMPARAISON de la METHODE UTILISEE et de la METHODE de RESONANCE MAGNETIQUE INTRODUITE par RABI | 56 |
| 1 - La méthode résonnante de Rabi (résonance magnétique) | 56 |
| 2 - Utilisation d'aimants focalisants | 58 |
| 3 - Utilisation de lumière polarisée comme sélecteur d'états magnétiques | 60 |
| 4 - Utilisation d'un faisceau laser pour "polariser" le jet atomique et d'un aimant inhomogène comme analyseur | 61 |
| C - TRANSMISSION de l'AIMANT HEXAPOLAIRE ; ANGLE SOLIDE UTILE | 63 |
| 1) Introduction | 63 |
| 2) Trajectoires des atomes et angle solide utile | 64 |
| 3) Applications numériques | 69 |

| | |
|--|----|
| D - COMPARAISON de la TRANSMISSION de notre APPAREIL avec des APPAREILS "de TYPE RABI" COMPRENANT DEUX AIMANTS | 72 |
| 1) Comparaison avec un appareil utilisant deux aimants défecteurs | 72 |
| 2) Comparaison avec les appareils utilisant des aimants focalisateurs | 72 |
| E - CALCUL du RENDEMENT GLOBAL de la METHODE et de l'EFFET DOPPLER RESIDUEL du JET ATOMIQUE | 76 |
| 1) Calcul du rendement global de la méthode | 76 |
| 2) Calcul du rendement global de la méthode dans le cas d'un isotope de courte période | 79 |
| 3) Calcul de l'effet Doppler résiduel | 80 |

IV - Le POMPAGE OPTIQUE : CALCUL de l'AMPLITUDE

| | |
|---|----|
| <u>et de la LARGEUR en FREQUENCE des SIGNAUX</u> | 83 |
| A - POSITION du PROBLEME | 83 |
| B - CALCUL de l'AMPLITUDE du SIGNAL et de la VITESSE de POMPAGE | 85 |
| 1) Hypothèses simplificatrices | 85 |
| 2) Notations | 86 |
| 3) Equations du problème | 88 |
| 4) Résultats | 91 |
| 5) Considérations élémentaires sur les valeurs limites des signaux | 93 |
| a) Introduction | 93 |
| b) Le laser est accordé sur la transition $F=2$, $F'=1$ | 93 |
| c) Le laser est accordé sur la transition $F=2$, $F'=2$ | 95 |
| d) Le laser est accordé sur la transition $F=1$, $F'=1$ | 95 |
| e) Le laser est accordé sur la transition $F=1$, $F'=2$ | 97 |
| f) Conclusions | 97 |

IV

| | |
|---|-----|
| C - CALCUL de la LARGEUR en FREQUENCE des SIGNAUX | 98 |
| 1) Hypothèses simplificatrices et notations | 98 |
| 2) Equations différentielles du système | 100 |
| 3) Passage à un système d'équations indé- pendantes du temps | 101 |
| 4) Solution du problème | 103 |
| 5) Ordres de grandeur et valeurs numériques | 106 |
| 6) Largeur en fréquence des raies | 111 |

| | |
|---|-----|
| V - <u>RESULTATS et CONCLUSIONS</u> | 113 |
| A - PROCEDURE d'ENREGISTREMENT des RESULTATS | 113 |
| B - MESURE des SPINS NUCLEAIRES | 115 |
| C - STRUCTURES HYPERFINES. MOMENTS MAGNETIQUES et DEPLACEMENTS ISOTOPIQUES | 120 |
| D - MISE en EVIDENCE d'un EFFET de VOLUME dans le DEPLACEMENT ISOTOPIQUE | 123 |
| E - MESURES EFFECTUEES sur la RAIE D_2 ; MOMENTS QUADRUPOLAIRES | 125 |
| F - CONCLUSION | 127 |

Deuxième Partie : PHOTOIONISATION des NIVEAUX EXCITES

| | |
|---|-----|
| <u>du SODIUM</u> | 129 |
| I - <u>INTRODUCTION</u> | 133 |
| II - <u>PRINCIPE de l'EXPERIENCE</u> | 137 |
| III - <u>Le DISPOSITIF EXPERIMENTAL</u> | 142 |
| A - Le JET ATOMIQUE | 142 |
| 1) Introduction | 142 |
| 2) L'enceinte, le vide | 142 |
| 3) Le four ; les fentes ; les diaphragmes froids ; le détecteur | 147 |
| 4) La zone d'interaction avec la lumière ; la détection des ions | 151 |

| | |
|---|-----|
| B - Les LASERS | 153 |
| 1) Principe de fonctionnement d'un oscillateur paramétrique optique | 154 |
| a) Introduction | 154 |
| b) Amplification paramétrique | 155 |
| c) Oscillateur paramétrique | 156 |
| 2) Les lasers utilisés | 158 |
| a) Le laser pompe | 158 |
| b) L'oscillateur paramétrique optique | 159 |
| c) Le doublage en fréquence | 160 |
| d) Caractéristiques du rayonnement ultra-violet photoionisant | 162 |
| C - Le MONTAGE EXPERIMENTAL | 162 |
| IV - <u>MESURES et RESULTATS</u> | 166 |
| A - MESURES | 166 |
| B - RESULTATS | 169 |
| C - CONCLUSIONS | 174 |
| V - <u>DETECTION par PHOTOIONISATION des NIVEAUX</u> <u>de RYDBERG nf DANS le SODIUM</u> | 177 |
| Troisième Partie : <u>IONISATION par CHAMP des NIVEAUX</u> <u>de RYDBERG du SODIUM</u> | |
| I - <u>INTRODUCTION</u> | 183 |
| II - <u>POSITION du PROBLEME</u> | 185 |
| A - MODELE ELEMENTAIRE | 185 |
| B - SCHEMA de PRINCIPE d'une EXPERIENCE TYPE | 188 |
| C - PASSAGES ADIABATIQUE ET DIABATIQUE | 193 |
| D - MOTIVATIONS | 195 |
| III - <u>La METHODE EXPERIMENTALE</u> | 196 |
| A - PRINCIPE de l'EXPERIENCE | 196 |
| B - Les LASERS | 197 |

| | |
|--|---------|
| C - MONTAGE EXPERIMENTAL | 203 |
| D - CHOIX des POLARISATIONS LUMINEUSES | 208 |
| E - OBSERVATION des ETATS np | 212 |
| F - Le CHAMP ELECTRIQUE PULSE et le SYSTEME de COMPTAGE à PORTE | 214 |
| IV - <u>RESULTATS EXPERIMENTAUX. MESURE des</u> <u>SEUILS d'IONISATION</u> | 218 |
| A - RESULTATS sur les ETATS ns | 218 |
| B - RESULTATS sur les ETATS nd et np | 225 |
| C - DISCUSSION des RESULTATS ; CONFIRMATION d'un PASSAGE ADIABATIQUE de CHAMP NUL en CHAMP FORT pour les ETATS $ m_L = 0$ | 234 |
| V - <u>CONCLUSIONS</u> | 238 |
| A - CAS de l'HYDROGENE | 239 |
| B - CAS des ATOMES ALCALINS | 241 |
| C - CONSEQUENCES | 244 |
| D - PERSPECTIVES | 246 |
| <u>CONCLUSION GENERALE</u> | 247 |
| <u>BIBLIOGRAPHIE</u> | 251 |

INTRODUCTION GENERALE

Le travail décrit dans ce mémoire se place dans le cadre très général de la spectroscopie par radiation monochromatique accordable (S R M A) et plus précisément dans celui des méthodes spectroscopiques utilisant des jets atomiques croisés avec un ou plusieurs faisceaux de lasers accordables.

Dans les méthodes spectroscopiques de type S R M A le système atomique étudié est soumis à un rayonnement monochromatique dont on fait varier la fréquence de façon contrôlée et l'on détecte la réponse du système atomique à cette excitation. La résolution expérimentale est alors fixée par la largeur spectrale du rayonnement exciteur ; le choix du moyen de détection, qui est sans effet sur la résolution, ne détermine que la sensibilité de la méthode.

Bien que les premières expériences aient été faites avec des sources classiques [1], c'est l'apparition des lasers qui a permis l'essor actuel de ce type de méthodes. En effet, les rayonnements laser, qui présentent une forte densité d'énergie dans un très faible intervalle spectral, constituent une source idéale pour la S R M A .

Avec les lasers à longueur d'onde variable et, plus précisément les lasers à colorant, le champ d'application de ces méthodes s'est considérablement ouvert et l'on a pu dès lors envisager de mesurer des structures avec une précision comparable à la largeur spectrale de la source qui peut être de moins de 1 MHz. En tout état de cause, la

largeur naturelle des niveaux excités due à leur durée de vie finie (typiquement de l'ordre de 10 MHz pour un niveau de résonance) fixe une limite inférieure pour la largeur en fréquence des raies observées. Mais si le système atomique étudié est une vapeur dans une cellule, l'élargissement des raies par effet Doppler est, en général, beaucoup plus important (quelques centaines de MHz ou quelques GHz) et c'est lui qui, en définitive, limite la résolution spectrale.

Les structures qui sont masquées dans une observation classique par l'élargissement Doppler peuvent être néanmoins observées par spectroscopie optique (Spectroscopie sub-Doppler). Un certain nombre de méthodes permettent en effet de travailler sur une vapeur et de s'affranchir cependant des élargissements par effet Doppler. Ce sont, par exemple, l'absorption saturée [2] [3] [4], la spectroscopie d'absorption à deux photons [5] ainsi que toutes les méthodes d'affinement par laser dans les systèmes à deux et trois niveaux [6] [7].

Une autre façon de résoudre le problème posé par la spectroscopie sub-Doppler consiste à choisir comme système atomique, non plus les atomes d'une vapeur dans une cellule, mais ceux d'un jet atomique dans une enceinte sous vide. Le jet atomique et le faisceau excitateur sont perpendiculaires. La largeur Doppler résiduelle, due à la divergence du jet atomique, peut être ramenée à une valeur très faible, en général inférieure à la largeur naturelle des raies étudiées par un choix convenable de la collimation du jet.

De plus, l'utilisation d'un jet atomique, de préférence à une vapeur, présente certains avantages autres que le gain en résolution par suppression de l'élargissement Doppler. On peut, par exemple, s'affranchir des effets dus aux parois et étudier des éléments présentant une forte réactivité chimique comme c'est le cas pour le francium [8]. Enfin on élimine, par cette méthode, les effets des collisions, ce qui garantit une étude spectroscopique d'atomes libres. Ceci est particulièrement nécessaire dans le cas des études sur les états de Rydberg ;

les atomes dans de tels états très excités sont, en effet, des atomes géants très sensibles aux collisions et une étude en jet atomique peut se révéler indispensable. Les expériences décrites dans ce mémoire ont toutes été effectuées sur un jet atomique.

Pour achever de caractériser les techniques de S R M A il reste encore à préciser le mode de détection de l'interaction entre les atomes et le rayonnement. Cette détection peut porter soit sur les photons (absorption, fluorescence), soit sur les atomes du jet (détecteurs non optiques). Les avantages et les inconvénients de ces diverses méthodes ont été discutés en détail par P. JACQUINOT [9]. Nous les énumérons ici très brièvement :

La détection de la fluorescence du jet est la plus sensible des méthodes optiques. Sa mise en oeuvre est extrêmement simple et c'est cette méthode que l'on trouve le plus couramment utilisée ; elle est en particulier employée pour asservir un laser sur une transition atomique dans un jet [10]. A titre d'exemples on peut citer l'étude des raies de résonance du sodium [11] ainsi que celle de la structure hyperfine du niveau 5s du sodium dans une expérience à deux étages (Voir Annexe I).

Dans le cas où les atomes excités par le rayonnement ne peuvent retomber que sur le niveau de départ, chaque atome peut émettre un grand nombre de photons de fluorescence ; de ce fait, la détection par fluorescence est, dans ce cas, extrêmement sensible. Dans le cas contraire, le pompage optique fait que chaque atome ne peut émettre qu'un petit nombre de photons. C'est ce qui se passe, par exemple, dans l'étude des raies de résonance des alcalins, à cause de l'existence d'une structure hyperfine pour l'état fondamental de ces atomes.

Par ailleurs, les photons de fluorescence sont émis dans toutes les directions de l'espace et l'on ne peut, par conséquent, en collecter qu'une partie. Il faut, de plus, tenir compte du rendement quantique de

la photocathode du détecteur. Enfin les problèmes de lumière parasite (en particulier la lumière laser diffusée par les fenêtres de l'enceinte*) et de bruit de détecteur fixent une limite à la sensibilité de cette méthode [12].

On peut également utiliser une détection opérant non plus sur les photons mais sur les atomes. L'interaction résonnante des atomes avec la lumière peuple l'état supérieur de la transition. Tout processus qui permet d'ioniser les atomes dans cet état sans ioniser ceux qui sont restés dans l'état fondamental peut donner lieu à une méthode de détection. C'est le cas, par exemple, de la photoionisation et de l'ionisation par un champ électrique statique pulsé.

Par ailleurs lorsque les atomes, qui ont interagi avec la lumière résonnante, retombent dans leur état fondamental, certaines de leurs grandeurs physiques, par exemple la quantité de mouvement ou l'état magnétique de l'atome, ont pu être modifiées. Cette modification peut, sous certaines conditions, se traduire par un changement de la trajectoire ultérieure de ces atomes. Ceci permet d'envisager d'autres méthodes de détection particulièrement adaptées aux espèces atomiques que l'on sait facilement détecter dans leur état fondamental. La déflexion d'un jet atomique par transfert de la quantité de mouvement des photons excitateurs et la déflexion magnétique par un champ magnétique inhomogène sont des méthodes de ce type.

La détection par photoionisation à partir de l'état supérieur de la transition est une méthode en principe assez universelle, mais elle se heurte dans bien des cas à la faiblesse des sections efficaces de photoionisation.

* On peut s'affranchir de ce problème dès que l'on a la possibilité de détecter la fluorescence du jet à une longueur d'onde différente de celle du rayonnement laser excitateur, ou, dans le cas d'une excitation par un rayonnement pulsé, en retardant la détection de la fluorescence par rapport à l'excitation.

La méthode d'ionisation par un champ électrique statique pulsé n'est applicable que lorsque le niveau supérieur de la transition est un niveau très excité proche de la limite d'ionisation. En effet, plus ce niveau est profond, plus le champ électrique nécessaire pour ioniser l'atome doit être fort. C'est par conséquent la méthode idéale pour détecter les états de Rydberg.

La méthode utilisant la déflexion d'un jet atomique par transfert de la quantité de mouvement des photons excitateurs (voir Annexe II) n'a pas eu de grands développements car elle nécessite un jet très collimaté à cause de la faible déflexion produite par l'absorption d'un seul photon [13]. Elle a cependant donné des résultats sur les raies de résonance du sodium [14]. Mais elle est mieux adaptée, pour les mêmes raisons que la méthode de fluorescence, aux cas exempts de pompage optique pour lesquels un effet cumulatif, donc une déflexion plus grande, sont possibles [15].

La méthode de déflexion magnétique par un champ inhomogène se limite bien évidemment aux atomes paramagnétiques dans leur état fondamental ($J \neq 0$) ; elle n'est, en pratique, applicable qu'aux atomes de valeur de J faible. Le cas le plus avantageux est celui des alcalins ($J = 1/2$). Une méthode de spectroscopie tout-à-fait analogue, dans le domaine optique, à la méthode de résonance magnétique de Rabi a été développée au laboratoire [16] (Annexe III). Une variante, utilisant un seul aimant hexapolaire et permettant l'utilisation d'un jet plus court et plus ouvert s'est révélée extrêmement sensible dans le cas des atomes alcalins (Annexe IV).

En fait, ces méthodes utilisant la déflexion d'un jet nécessitent la mise en oeuvre d'une détection sensible des atomes. Ceci est possible dans le cas d'atomes radioactifs, d'atomes dans des états métastables (détection par fil froid) ou encore d'atomes dans leur état fondamental mais présentant un faible potentiel d'ionisation (ionisation sur

un fil chaud). Contrairement aux deux premières méthodes, l'ionisation ne sert ici qu'à détecter les atomes et non l'interaction proprement dite.

Une étude systématique de ces diverses méthodes de détection a été entreprise au Laboratoire Aimé Cotton [9] [16] [17] et dans la plupart des cas ce sont les raies de résonance D_1 et D_2 de l'atome de sodium ^{23}Na qui ont été étudiées. J'ai participé à un certain nombre de ces expériences mais je n'aborde pas cette partie de mon travail dans ce mémoire. Les résultats obtenus ont donné lieu à des publications et les articles correspondants sont donnés sous forme d'Annexes, à la fin de cet exposé (Annexes I, II, III, IV, VIII).

L'un des buts de ces études méthodologiques était de déterminer la méthode la plus adéquate pour faire des mesures de spectroscopie à très haute résolution sur de longues séquences d'isotopes produits en ligne avec des accélérateurs. Les séquences d'isotopes qui ont été étudiées jusqu'à présent sont toutes des séquences d'atomes alcalins. Pour ce type d'atomes une méthode de détection utilisant le pompage optique suivi d'une déflexion magnétique par un champ hexapolaire (Annexe IV) s'est révélée être très sensible. C'est cette méthode qui a été choisie pour étudier les structures hyperfines et les déplacements isotopiques des isotopes de sodium d'abord, puis plus récemment de césium, de rubidium et de francium. Ces expériences de spectroscopie sur des atomes radioactifs ont nécessité des compétences scientifiques dans des domaines très variés. Dans ce cadre, mon travail personnel a été plus particulièrement axé sur la partie de l'expérience qui concerne le jet atomique et la détection des résonances. La première partie de l'exposé qui suit aborde donc les expériences de spectroscopie à haute résolution sur les isotopes radioactifs d'alcalins sous l'angle de la méthodologie. Pour cette raison je me limite aux résultats obtenus sur les isotopes de sodium et ceux-ci sont présentés de façon très brève et sans interprétation nucléaire.

Par ailleurs, les études méthodologiques des autres moyens de détection mentionnées plus haut ont fait apparaître un certain nombre de problèmes de physique atomique.

Pour mettre en oeuvre une détection des résonances optiques par photoionisation à partir de l'état excité, j'ai été tout naturellement amené à m'intéresser au problème de la mesure de la section efficace de photoionisation à partir de cet état ou du moins de sa variation avec la fréquence du rayonnement photoionisant. J'ai également montré que l'on pouvait, par un choix convenable des polarisations des rayonnements excitateurs, déterminer expérimentalement les contributions respectives des continuums ϵs et ϵd à la section efficace totale de photoionisation à partir du niveau de résonance $3p$ de l'atome de sodium. Cette étude est décrite dans la deuxième partie de l'exposé. Pour illustrer la possibilité de détecter les résonances optiques par photoionisation, une expérience de spectroscopie dans laquelle nous avons observé les niveaux nf de l'atome de sodium par cette méthode est présentée à la fin de cette deuxième partie.

Enfin la troisième partie de l'exposé aborde le problème des seuils d'ionisation et de leur définition précise dans le mécanisme de l'ionisation par un champ électrique statique pulsé. Ce problème, en effet, se pose dès que l'on utilise ce mécanisme comme moyen de détection des atomes dans des états atomiques très excités.

Première Partie

DETECTION DES RESONANCES OPTIQUES
PAR POMPAGE OPTIQUE ET SELECTION MAGNETIQUE
A L'AIDE D'UN AIMANT A CHAMP INHOMOGENE ;
APPLICATION DE CETTE METHODE A L'ETUDE EN LIGNE
DES RAIES DE RESONANCE
DES ISOTOPES RADIOACTIFS DE SODIUM.

I - RAPPELS et PRINCIPE de la METHODE EXPERIMENTALE.

A - INTRODUCTION.

Le but des expériences décrites ici est d'obtenir, par des mesures optiques, des informations nucléaires sur une longue série d'isotopes radioactifs d'un même élément, le sodium dans le cas présent. L'étude à très haute résolution des raies de résonance D_1 et D_2 du sodium permet de mesurer la structure hyperfine du niveau fondamental et des premiers niveaux excités ($3^2P_{1/2}$ et $3^2P_{3/2}$) pour chaque isotope ainsi que le déplacement isotopique entre les raies de deux isotopes différents. Nous pouvons également déterminer, lorsqu'il n'est pas connu, le spin nucléaire I de chaque isotope.

La connaissance de ces grandeurs permet d'atteindre un certain nombre de paramètres nucléaires :

- le moment magnétique nucléaire à partir de la structure hyperfine de l'état fondamental ;
- le moment électrique quadrupolaire à partir de la structure hyperfine du niveau excité $3^2P_{3/2}$;
- la variation du rayon carré moyen de charge du noyau à partir du déplacement isotopique.

Dans ce dernier cas, cependant, seule la partie du déplacement isotopique due à l'effet de volume [18][19] nous intéresse et il faut soustraire du déplacement total la partie due à l'effet de masse. Cette quantité n'est malheureusement pas exactement calculable à cause de l'effet de masse spécifique, mais sa dépendance en fonction de la masse des isotopes est connue de sorte que, quelle que soit la longueur de la série d'isotopes étudiés, le déplacement de masse total apparaît comme un seul paramètre ajustable pour toute la série. Les effets dus au déplacement de volume sont donc d'autant plus faciles à observer que la chaîne d'isotopes est plus longue. Par ailleurs, on s'attend à ce que les isotopes les plus exotiques, loin de la vallée de stabilité, possèdent des noyaux très déformés, ce qui doit entraîner une variation anormalement élevée du rayon carré de charge pour ces isotopes ; on a donc intérêt, pour ces deux raisons, à étudier une série d'isotopes aussi longue que possible.

Les structures que l'on veut mesurer étant très inférieures à la largeur Doppler, nous avons effectué nos expériences sur un jet atomique, ce qui permet d'éliminer l'effet Doppler en utilisant un rayonnement exciteur de direction de propagation perpendiculaire à la direction du jet.

Ces isotopes radioactifs sont produits en bombardant une cible avec un faisceau de protons d'énergie convenable fourni par un accélérateur. Certains isotopes sont produits en abondance mais, si l'on veut étudier une longue série d'isotopes, il faut s'intéresser aussi à des isotopes produits en très faible quantité. Nous avons donc développé pour cette étude une méthode de détection très sensible des résonances optiques : les atomes du jet atomique interagissent avec le rayonnement monochromatique fourni par un laser accordable puis traversent l'entrefer d'un aimant hexapolaire avant d'être reçus sur un détecteur. L'aimant hexapolaire permet d'analyser l'état magnétique des atomes du jet. Lorsque le rayonnement laser a une fréquence convenable pour interagir de façon résonnante avec les atomes du jet, il y a modification, par pompage

optique, de l'état magnétique d'une partie des atomes du jet. C'est cette modification qui, analysée par l'aimant hexapolaire, permet de détecter les résonances optiques. Le principe de cette méthode de détection sera présenté dans le paragraphe E de ce chapitre, après qu'un certain nombre de rappels auront été faits dans les paragraphes B-C-D.

Nous présenterons ensuite en détail le dispositif expérimental dans le chapitre II ; la méthode de détection sera discutée dans le chapitre III et les signaux que l'on peut attendre seront calculés au chapitre IV. Enfin, dans le chapitre V, on trouvera les premiers résultats obtenus par cette méthode sur les isotopes de sodium.

B - TRANSITIONS ETUDIEES.

Les expériences décrites dans ce chapitre ont été effectuées sur les raies de résonance D_1 ($3^2S_{1/2} \longleftrightarrow 3^2P_{1/2}$) et D_2 ($3^2S_{1/2} \longleftrightarrow 3^2P_{3/2}$) des isotopes stable et instables de l'atome de sodium. L'état fondamental de l'atome de sodium ($3^2S_{1/2}$) est un état paramagnétique ($J \neq 0$). Si le noyau possède un spin nucléaire I non nul et un moment magnétique nucléaire, chaque raie de résonance comprend un certain nombre de composantes hyperfines dont les écarts en fréquence reflètent les structures de l'état fondamental ($3^2S_{1/2}$) et des états excités ($3^2P_{1/2}$ et $3^2P_{3/2}$). La figure I-1 présente le schéma des niveaux d'énergie (niveaux hyperfins) mis en jeu dans les transitions étudiées ainsi que les composantes hyperfines des transitions pour un isotope ^XNa de spin nucléaire $I > 3/2$.

$x\text{Na}$

$l \geq 3/2$

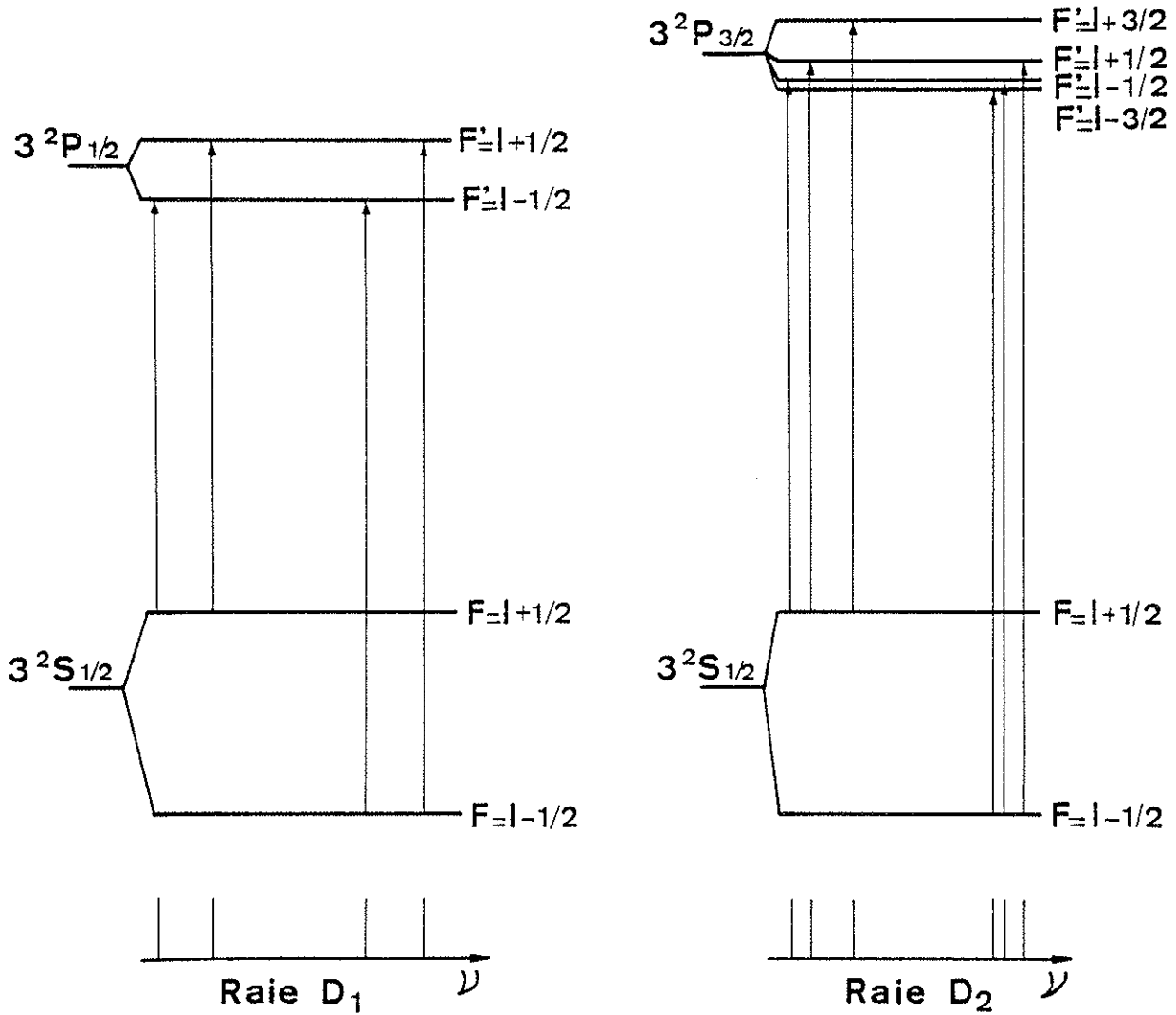


Figure I-1

Diagramme des niveaux d'énergie étudiés.

Les intensités relatives et les écarts relatifs des composantes dépendent de l et ne sont pas représentés sur la figure.

Les niveaux hyperfins de l'état fondamental sont notés F , ceux des états excités sont notés F' ; cette convention sera conservée tout au long de ce chapitre et sera étendue aux sous-niveaux Zeeman (m_F et $m_{F'}$).

La mesure des écarts de fréquence entre les différentes composantes hyperfines d'une même transition pour deux isotopes donne accès aux structures hyperfines de l'état fondamental et de l'état excité de chaque isotope, ainsi qu'au déplacement isotopique de la transition pour le couple d'isotopes considéré.

C - NIVEAUX d'ENERGIE de l'ETAT FONDAMENTAL dans un CHAMP MAGNETIQUE.

Les atomes que nous avons étudiés sont produits par réaction nucléaire en bombardant une cible avec un faisceau de protons fourni par un accélérateur. Cette cible est contenue dans un four chauffé à une température T supérieure à 1000°K et les atomes radioactifs produits sont thermalisés dans ce four avant de sortir pour former le jet atomique. L'écart d'énergie ΔW correspondant à la structure hyperfine du fondamental Δv_{HFS} est très inférieur à kT . A titre d'exemple pour ^{23}Na $\Delta v_{\text{HFS}} = 1772 \text{ MHz}$ et $\frac{\Delta W}{kT} = \frac{h\Delta v_{\text{HFS}}}{kT} < 0,85 \times 10^{-4}$ pour $T > 1000^\circ\text{K}$. Par conséquent, pour les atomes qui s'échappent du four et qui forment le jet, les niveaux hyperfins $F = I + \frac{1}{2}$ et $F = I - \frac{1}{2}$ sont peuplés dans le rapport des poids statistiques. Les niveaux excités, eux, ne sont pas peuplés puisque $\frac{h\nu_{\text{opt}}}{kT} \simeq 24,4 \gg 1$ pour $T = 1000^\circ\text{K}$.

Les atomes du jet atomique sont soumis, au cours de leur trajet, à des champs magnétiques dont l'intensité peut aller d'une fraction de Gauss (région d'interaction avec la lumière) à 10 KG (dans l'aimant hexapolaire). On rappelle ici brièvement certains résultats très classiques [20].

Pour tous les sous-niveaux de l'état fondamental qui ont tous la même valeur de J donnée ($1/2$), l'hamiltonien de l'atome dans le champ magnétique extérieur \vec{B}_0 peut s'écrire, à une constante près, sous la forme d'un hamiltonien effectif \mathcal{H}_M

$$\mathcal{H}_M = hA\vec{I}\cdot\vec{J} - \frac{\mu_J}{J} \vec{J}\cdot\vec{B}_0 - \frac{\mu_I}{I} \vec{I}\cdot\vec{B}_0 = \mathcal{H}_0 + \mathcal{H}_1 + \mathcal{H}_2 \quad .$$

Lorsque \mathcal{H}_0 est prépondérant devant les deux autres termes, on dit que l'on est en champ faible.

Les états propres de \mathcal{H}_0 sont les états $|F, m_F\rangle$ et $\mathcal{H}_1 + \mathcal{H}_2$ peut être traité comme une perturbation. En présence d'un champ magnétique "faible" les deux niveaux hyperfins $F = I + \frac{1}{2}$ et $F = I - \frac{1}{2}$ de l'état fondamental se décomposent en sous-niveaux Zeeman, F, m_F (respectivement $2I+2$ et $2I$ sous-niveaux Zeeman).

Lorsque, au contraire, \mathcal{H}_0 peut être négligé devant \mathcal{H}_1 , on dit que l'on est en champ magnétique "fort".

Dans ce cas on utilise la base des états $|m_I, m_J\rangle$ dans laquelle l'opérateur $\mathcal{H}_1 + \mathcal{H}_2$ est diagonal, \mathcal{H}_0 étant traité comme une perturbation. Dans le cas qui nous intéresse ($J=1/2$) les niveaux d'énergie se groupent en deux paquets correspondant aux deux valeurs possibles de m_J ($m_J = \pm 1/2$). En effet $|\mu_I| \ll |\mu_J|$ et \mathcal{H}_2 est toujours négligeable devant \mathcal{H}_1 .

Les énergies des niveaux, c'est-à-dire les valeurs propres de l'hamiltonien \mathcal{H}_M , peuvent être calculées exactement comme fonctions

de B_0 . Dans le cas $J=1/2$ elles sont données par la formule de Breit-Rabi :

$$W_{F, m_F}(B_0) = -\frac{\Delta W}{2(2I+1)} - \frac{\mu_I}{I} B_0 m_F \pm \frac{\Delta W}{2} \sqrt{1 + \frac{4m_F x}{2I+1} + x^2}$$

avec $\Delta W = \frac{hA}{2} (2I+1) = h\Delta\nu_{\text{HFS}}$

$$x = \frac{(-\mu_J/J + \mu_I/I)B_0}{\Delta W}$$

Le signe + correspondant à $F = I+1/2$ et le signe - à $F = I-1/2$:

- Le domaine où l'approximation de "champ faible" est valable correspond à $x \ll 1$;
- Celui où l'approximation de "champ fort" s'applique correspond à $x \gg 1$;
- Entre ces deux domaines on dit que l'on est en champ intermédiaire.

A titre d'exemple les niveaux d'énergie $W_{F, m_F}(B)$ sont représentés sur la figure I-2 dans le cas d'un spin nucléaire $I=3/2$ et d'un moment magnétique positif ($\mu_I > 0$) (cas du ^{23}Na par exemple).

Ordre de grandeur :

$$x = \frac{(-\mu_J/J + \mu_I/I)B}{\Delta W} \approx \frac{g_J \mu_0 B}{\Delta W} \approx \frac{2\mu_0 B}{h \Delta\nu_{\text{HFS}}}$$

$$\frac{2\mu_0}{h} = 2,80 \text{ MHz/Gauss} , \text{ et, pour le sodium } ^{23}\text{Na}, x=1 \text{ pour}$$

$$B = \frac{1772}{2,80} \text{ G}$$

$$x = 1 \text{ pour } B \approx 633 \text{ Gauss pour } ^{23}\text{Na}$$

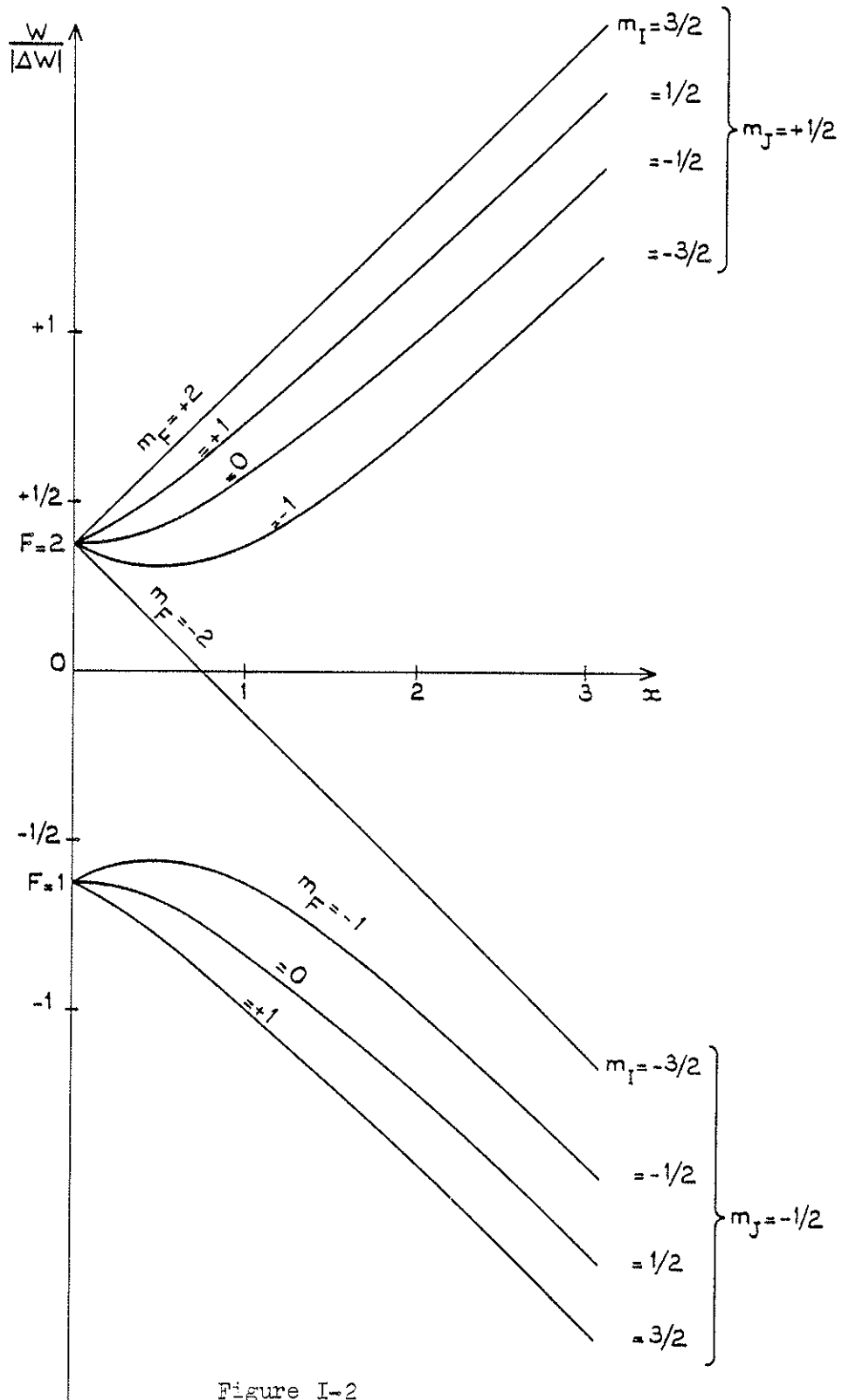


Figure I-2

Variation de l'énergie W des sous-niveaux Zeeman de l'état fondamental en fonction du champ magnétique

$$\left(x = \frac{(-\mu_J/J + \mu_I/I) B}{\Delta W}\right) \text{ pour un spin nucléaire } I = 3/2 \text{ et un moment magnétique nucléaire } \mu_I > 0 \text{ (cas de } ^{23}\text{Na)}.$$

D - DEFLEXION des ATOMES dans un CHAMP MAGNETIQUE INHOMOGENE.

Si $W(B)$ est l'énergie potentielle d'un atome dans un champ magnétique \vec{B} la force qui s'exerce sur cet atome est

$$\vec{F} = -\vec{\nabla}W = -\frac{\partial W}{\partial B} \cdot \vec{\nabla}B \quad (1)$$

Dans le cas d'un moment magnétique $\vec{\mu}$ indépendant de \vec{B} l'énergie s'écrit $W = -\vec{\mu} \cdot \vec{B} = -\mu_e \cdot B$ (2)

où μ_e est la projection de $\vec{\mu}$ sur \vec{B} . La force se calcule alors d'après (1)

$$\vec{F} = +\mu_e \cdot \vec{\nabla}B \quad (\mu_e = -\frac{\partial W}{\partial B} \text{ d'après (2)}).$$

Dans les cas plus compliqués où, à cause de l'interaction hyperfine, les fonctions $W(B)$ ne sont plus linéaires en B on définit par analogie avec le cas du moment magnétique constant une projection effective du moment magnétique $\mu_{\text{eff}} = -\frac{\partial W}{\partial B}$ qui cette fois dépend de B . La figure I-3 donne l'allure des fonctions $\mu_{\text{eff}}(B)$ pour tous les sous-niveaux.

Comme pour la figure I-2, les courbes de la figure I-3 se groupent en deux "paquets" lorsque l'on se trouve en champ fort et, pour chacun d'eux, μ_{eff} est à peu près constant et indépendant de B ($\mu_{\text{eff}} \approx \pm\mu_0$). Chaque groupe de sous-niveaux est caractérisé par une valeur de m_J : $m_J = -1/2$ pour $\mu_{\text{eff}} = +\mu_0$ et $m_J = +1/2$ pour $\mu_{\text{eff}} = -\mu_0$. Dans les conditions de champ magnétique fort, la force qui s'exerce sur un atome est proportionnelle au gradient du champ magnétique ; elle vaut $\vec{F} = +\mu_0 \vec{\nabla}B$ pour un atome dans un sous-niveau pour lequel $m_J = -1/2$: ces atomes sont donc attirés vers les champs élevés. Elle vaut $\vec{F} = -\mu_0 \vec{\nabla}B$ pour un atome dans un sous-niveau pour lequel $m_J = +1/2$: ces atomes sont repoussés par les champs élevés.

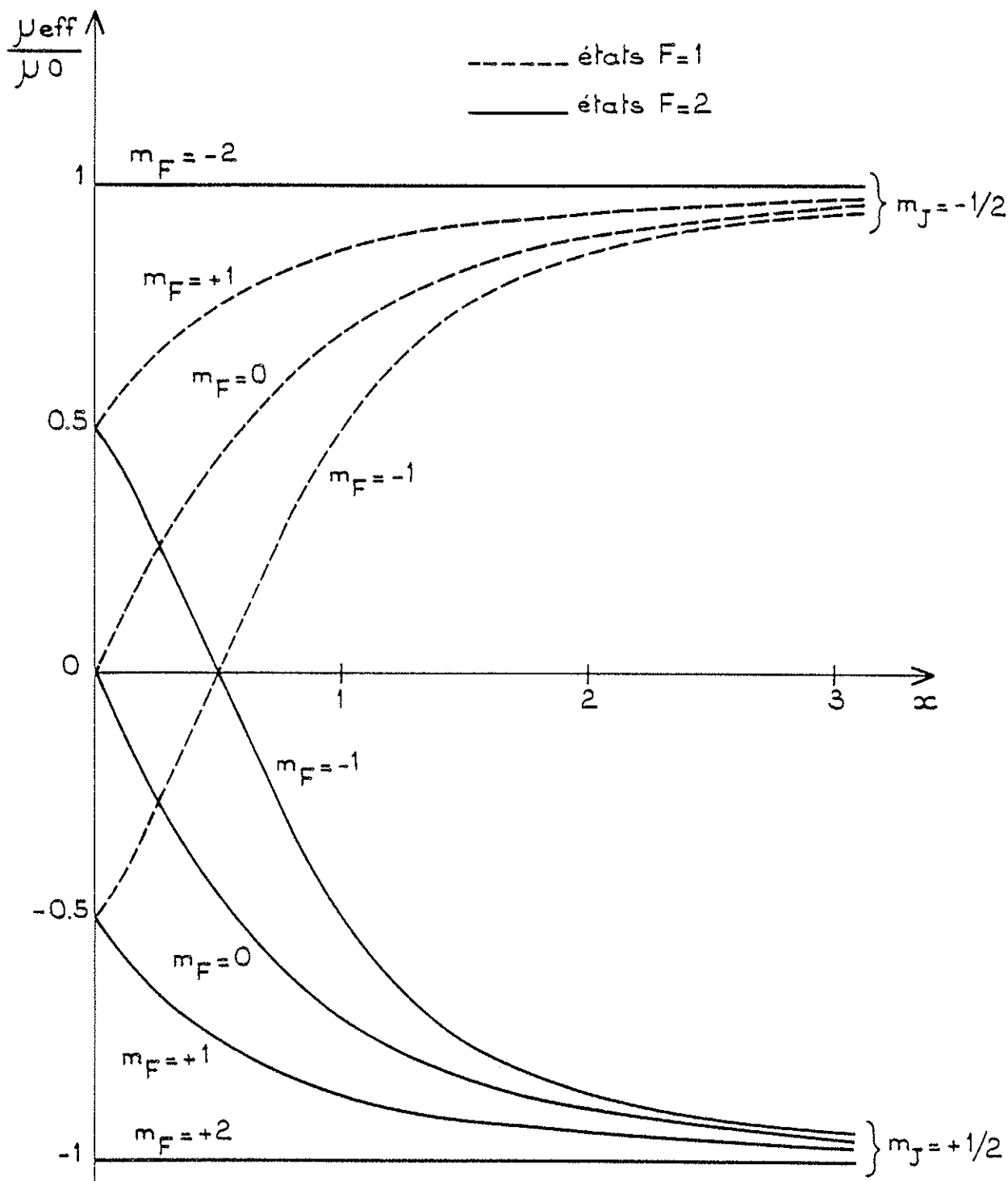


Figure I-3

Moment magnétique effectif μ_{eff} des sous-niveaux magnétiques de l'état fondamental de l'isotope ^{25}Na ($I=3/2$ $\mu_n > 0$) en fonction du champ magnétique.

L'effet du champ magnétique inhomogène est donc de séparer spatialement les atomes du jet atomique en fonction de leur valeur de m_J en champ fort ($m_J = \pm 1/2$). Les différents champs magnétiques inhomogènes utilisables ainsi que les avantages et les inconvénients de chacun d'eux seront présentés ultérieurement. On peut toutefois insister tout de suite sur le fait que ce qui est écrit ci-dessus n'est valable qu'en champ magnétique fort ($x \gg 1$) et que, pour des champs plus faibles, la situation est beaucoup plus compliquée. En effet, il existe alors autant de fonctions $\mu_{\text{eff}}(E)$ différentes que de sous-niveaux Zeeman et le calcul des trajectoires des atomes dans le champ devient très complexe. On peut noter par exemple que, pour les atomes appartenant à certains sous-niveaux, la force qu'ils subissent change de signe et s'annule pour une certaine valeur de B ($\mu_{\text{eff}}=0$). De cette propriété découle la méthode de mesure dite méthode de moment nul introduite par COHEN et MILLMAN [21]. Dans notre cas le champ magnétique devra être suffisamment intense pour que la région de champ magnétique inhomogène où se produit la séparation spatiale des atomes puisse être considérée comme une région de champ "fort" pour les atomes étudiés.

E - PRINCIPE de la DETECTION de la RESONANCE OPTIQUE par POMPAGE OPTIQUE SUIVI d'une DEVIATION MAGNETIQUE
(Voir Annexe IV).

La figure I-4 présente la schéma de principe de l'expérience et l'allure des signaux observés pour la raie D_1 dans le cas $I=3/2$ $\mu_I > 0$. Un jet atomique de sodium passe successivement à travers deux régions ① et ②. Dans la région ① où règne un champ magnétique très faible, les atomes du jet interagissent avec le rayonnement d'un laser à colorant

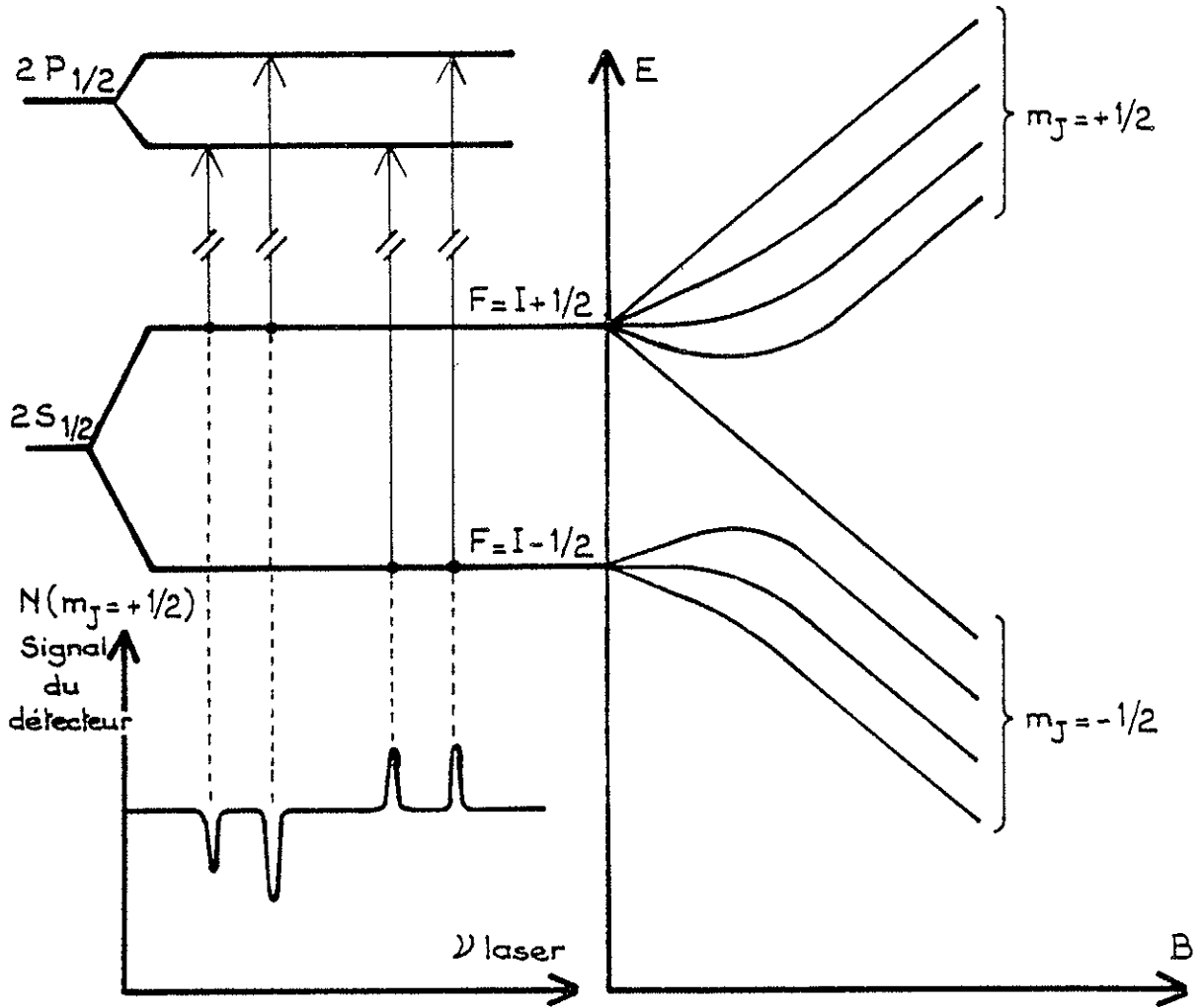
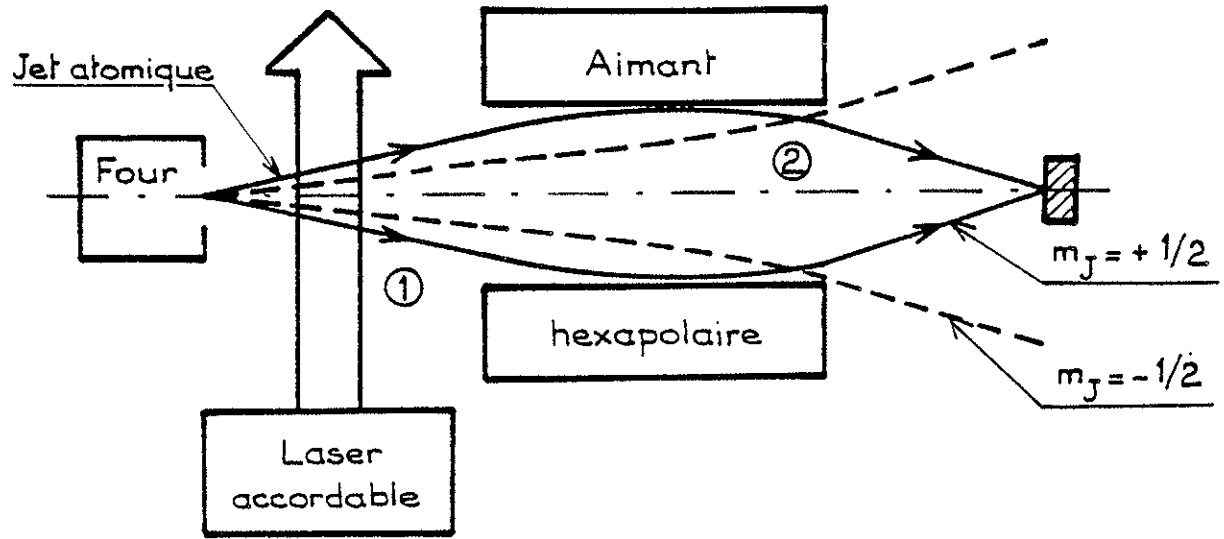


Figure I-4

Schéma de principe de l'expérience. Allure des signaux observés pour la raie D_1 dans le cas $I = 3/2$ $\mu_I > 0$.

monomode accordable. Le faisceau lumineux et le jet sont perpendiculaires pour s'affranchir de l'effet Doppler. Lorsque la fréquence du laser est accordée sur l'une des composantes hyperfines de la raie D_1 il se produit un pompage hyperfin qui modifie les populations relatives des sous-niveaux magnétiques $|F, m_F\rangle$ de l'état fondamental, initialement équipés. Les atomes du jet passent ensuite dans l'entrefer d'un aimant hexapolaire (région ②) où ils sont soumis à un champ magnétique "fort" et inhomogène. L'effet de l'aimant hexapolaire est de focaliser les atomes se trouvant dans les états $m_J = +1/2$ et de défocaliser les atomes se trouvant dans les états $m_J = -1/2$. Le détecteur ne reçoit donc que les atomes qui sont dans un état $m_J = +1/2$ en champ fort.

Le passage des atomes de la région ① à la région ②, c'est-à-dire d'une région de champ magnétique faible à une région de champ magnétique fort s'accompagne d'une évolution adiabatique de leur état magnétique ; c'est-à-dire qu'un atome initialement dans un état $|F, m_F\rangle$ donné va se retrouver, en champ fort, dans l'état $|m_I, m_J\rangle$ qui se déduit de l'état initial $|F, m_F\rangle$ par continuité sur les courbes d'énergie de la figure I-2 (reproduites sur la figure I-4). L'état atomique évolue en quelque sorte en "suivant" la courbe d'énergie quand $|\vec{B}|$ varie.

La modification de population sur les états $|F, m_F\rangle$, introduite par le pompage optique hyperfin, se transmet donc aux états $|m_I, m_J\rangle$.

La proportion d'atomes du jet ayant $m_J = +1/2$ en champ fort, qui est de 50% en l'absence de résonance optique et de pompage hyperfin, se trouve modifiée, ce qui entraîne une variation du signal reçu sur le détecteur.

Le sens et l'amplitude de cette modification dépendent de la transition sur laquelle la lumière est accordée (voir figure I-4).

F - POMPAGE OPTIQUE ZEEMAN et MESURE de SPIN par
RESONANCE MAGNETIQUE.

On peut remarquer, sur les figures I-2 et I-4, que tous les niveaux Zeeman du niveau hyperfin $F = I+1/2$ correspondent à des niveaux $m_J = -1/2$. Par contre, parmi les sous-niveaux Zeeman du niveau $F = I+1/2$ l'un d'eux, $F = I+1/2$ $m_F = -(I+1/2)$, correspond à $m_J = -1/2$, les autres à $m_J = +1/2$. Le choix de la polarisation de la lumière excitatrice permet, par pompage optique Zeeman, de modifier les populations des sous-niveaux Zeeman d'un même niveau hyperfin les uns par rapport aux autres. Le sous-niveau $F = (I+1/2)$ $m_F = -(I+1/2)$, ayant un comportement en champ fort totalement différent des autres sous-niveaux Zeeman du niveau hyperfin $F = I+1/2$, on pourra tirer avantage du pompage Zeeman pour renforcer l'amplitude d'un signal par un choix approprié de la polarisation du laser. De plus, dans le cas de la transition $^2S_{1/2}$, $F = I+1/2 \rightarrow ^2P_{3/2}$, $F' = I+3/2$ il n'y a aucun pompage hyperfin. Un signal peut cependant être obtenu par exemple en choisissant une lumière polarisée σ^- , qui, par pompage Zeeman, transfère toute la population du niveau hyperfin $F = I+1/2$ dans le seul sous-niveau Zeeman $F = I+1/2$ $m_F = -(I+1/2)$ (voir Annexe VI par exemple).

Afin de déterminer la valeur du spin nucléaire I , nous avons utilisé la méthode de la résonance magnétique. En effet, lorsque tout ou partie du signal obtenu pour une résonance optique est dû à un déséquilibre entre les sous-niveaux $F = I+1/2$, m_F du niveau $F = I+1/2$, l'application ultérieure d'un champ de radiofréquence de fréquence convenable, en égalisant les populations de ces sous-niveaux, modifie l'amplitude du signal. La mesure du champ statique B_0 dans lequel se fait la transition de radiofréquence et de la fréquence H.F. appliquée permet de choisir entre les différentes valeurs possibles pour le spin I (voir le Chapitre V pour la détermination du spin nucléaire I).

II - LE DISPOSITIF EXPERIMENTAL.

A - INTRODUCTION.

Plusieurs dispositifs expérimentaux ont été successivement utilisés dans le cadre de ces expériences. En effet, les premières expériences ont été réalisées au synchrotron d'Orsay (faisceau de protons de 150 MeV) et nous ont permis d'étudier les sodium ^{21}Na à ^{25}Na (voir Annexes V et VI). Pour étendre les mesures vers les isotopes lourds, l'expérience a été installée au P. S. (Proton synchrotron) du C.E.R.N. (faisceau de protons de 20 GeV) où nous avons pu observer et mesurer les structures des isotopes lourds jusqu'à ^{31}Na (voir Annexe VII).

Le mode de production des isotopes radioactifs et, par conséquent, les cibles utilisées sont totalement différents : à Orsay il s'agissait d'une réaction de spallation sur une cible d'aluminium fondu $^{27}\text{Al}(p,3pxn) ^{25-x}\text{Na}$, au C.E.R.N. il s'agit d'une réaction de fission sur une cible d'uranium.

Par ailleurs, les problèmes de radioactivité ambiante sont beaucoup plus aigus dans les expériences réalisées au C.E.R.N. que dans les précédentes. De plus, le dispositif expérimental, sans que le principe soit changé, a été amélioré et perfectionné au cours des expériences. La description sommaire qui en est faite ici correspond à l'appareil utilisé au C.E.R.N. ; les renseignements sur les versions antérieures

peuvent être trouvés dans les publications données en annexe (voir Annexes V et VI).

Ces expériences ont été réalisées par un groupe de chercheurs et, pour ma part, je me suis particulièrement occupé de la partie "jet atomique" de l'expérience, c'est-à-dire les problèmes de l'interaction du jet avec la lumière (pompage hyperfin, pompage Zeeman, etc...) et de la sélection magnétique des états par un champ inhomogène (choix d'un aimant hexapolaire).

Je développerai donc surtout ces deux parties alors que la production des isotopes radioactifs, le laser et la détection du jet (spectre de masse et traitement des données) ne seront décrits que très brièvement. On trouvera des détails complémentaires sur ces parties dans les publications données en annexe (Annexes V, VI et VII).

B - PRODUCTION : La CIBLE, le FOUR.

Les isotopes radioactifs étudiés sont produits par bombardement d'une cible d'uranium par un faisceau de protons de haute énergie. Le faisceau de protons fourni par le P.S. est un faisceau pulsé qui a les caractéristiques suivantes :

nombre de protons par impulsion : $N_p \ll 5 \times 10^{12}$,

énergie des protons : 20 GeV ,

fréquence des impulsions : $\ll 0,42$ Hz ($T \gg 2,45$ s) .

La cible est constituée par un empilement de feuilles de graphite sur lesquelles est déposée de la poudre de dioxyde d'uranium (UO_2) .

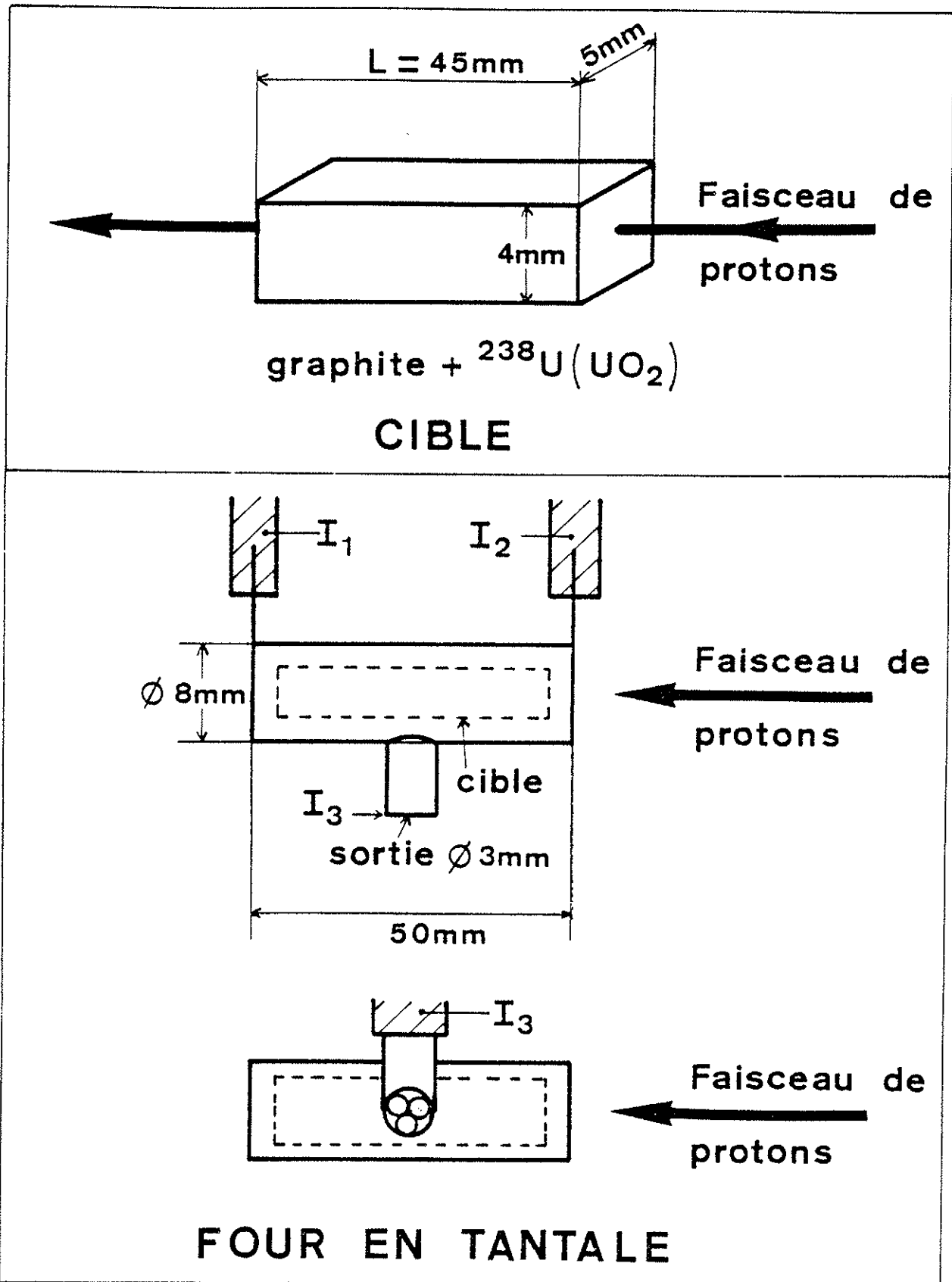


Figure II-1

La cible. Le four.

La cible a la forme d'un parallélépipède allongé de section 4mm x 5mm et de longueur 45mm (voir figure II-1). Elle est traversée par le faisceau de protons dans le sens de la longueur. La masse d'uranium contenue dans la cible, mesurée par pesée, est de 0,65 g. environ, ce qui correspond à $1,64 \times 10^{21}$ atomes ^{238}U , soit une densité $\rho = 1,83 \times 10^{21}$ atomes/cm³. Comme les sections efficaces de production ont déjà été mesurées pour les isotopes de sodium [22][23], on peut calculer le nombre N_I d'atomes produits pour un isotope I avec une section efficace σ_I

$$\begin{aligned} N_I &= \rho \times L \times \sigma_I \times N_p \\ &= 1,83 \times 10^{21} \times 4,5 \times \sigma_I \times 5 \times 10^{12} \\ &\approx 4,1 \times 10^{34} \times \sigma_I \quad (\sigma_I \text{ exprimé en cm}^2) \\ &\approx 4,1 \times 10^4 \times \sigma_I \quad (\sigma_I \text{ en } \mu\text{barn}) \end{aligned}$$

pour une impulsion de 5×10^{12} protons, L étant la longueur du trajet des protons dans la cible (L = 4,5 cm).

| |
|---|
| $N_I = 4,1 \times 10^4 \times \sigma_I \quad (\sigma_I \text{ en } \mu\text{barn}) .$ |
|---|

Les estimations de production qui peuvent être faites à partir de ce calcul sont rassemblées dans le tableau I.

La cible d'uranium est contenue dans un four cylindrique en tantale (voir figure II-1).

La sortie du four est constituée par un tube de tantale ($\varnothing = 3\text{mm}$, $l = 30\text{mm}$), soudé à angle droit sur le corps du four et dans lequel sont enfoncés trois petits tubes ($\varnothing = 1\text{mm}$, $l = 20\text{mm}$) pour augmenter éventuellement la directivité des atomes sortant du four. Comme on le verra par la suite, ce n'est pas cet élément qui définit la collimation du jet atomique car d'autres éléments (diaphragmes refroidis à l'azote liquide

| Masse | Durée de vie | Section efficace de production (μb) | Nombre d'atomes produits par 5×10^{12} protons |
|-------|--------------|--|---|
| 21 | 22,8 s | 60 | $2,46 \times 10^6$ |
| 22 | 2,64 y | 3500 | $1,43 \times 10^8$ |
| 23 | stable | 9900 | $4,06 \times 10^8$ |
| 24 | 15,02 h | 11600 | $4,76 \times 10^8$ |
| 25 | 60 s | 13000 | $5,33 \times 10^8$ |
| 26 | 1 s | 5100 | $2,09 \times 10^8$ |
| 27 | 288 ms | 1800 | $7,38 \times 10^7$ |
| 28 | 34 ms | 356 | $1,46 \times 10^7$ |
| 29 | 47 ms | 100 | $4,1 \times 10^6$ |
| 30 | 57 ms | 20 | $8,2 \times 10^5$ |
| 31 | 17 ms | 5 | $2,05 \times 10^5$ |
| 32 | | 0,3 | $1,23 \times 10^4$ |

Tableau I

Productions des différents isotopes radioactifs étudiés.

et aimant hexapolaire) imposent des conditions plus restrictives (voir chapitre III).

Les arrivées de courant I_1 et I_2 permettent de chauffer le four, une arrivée de courant auxiliaire I_3 permet de chauffer le tube de sortie indépendamment du reste du four.

Les isotopes radioactifs de sodium produits par fission de l'uranium sont implantés dans le graphite de la cible. Ils doivent d'abord diffuser dans ce graphite avant de sortir du four pour former le jet. Un chauffage du four à une température élevée (2000°K) permet d'augmenter la vitesse de diffusion et d'obtenir une sortie rapide de ces atomes par le tube de sortie du four ; ceci est particulièrement important pour les isotopes lourds dont les durées de vie sont inférieures à 60ms. On arrive en effet, en chauffant à 2000°K, à abaisser le temps de diffusion dans le graphite jusqu'à une valeur de l'ordre de 100 ms (voir chapitre III - §. E).

C - Le JET ATOMIQUE ; la REGION d'INTERACTION avec la LUMIERE.

Les isotopes de sodium produits par la réaction nucléaire sont thermalisés dans le four et s'en échappent pour former un jet atomique dans une enceinte où règne un vide poussé. La zone d'interaction avec la lumière est représentée schématiquement (vue d'ensemble et coupe) sur la figure II-2. Un blindage magnétique (voir figure) refroidi à l'azote liquide entoure la région d'interaction. Il est constitué d'un bloc de

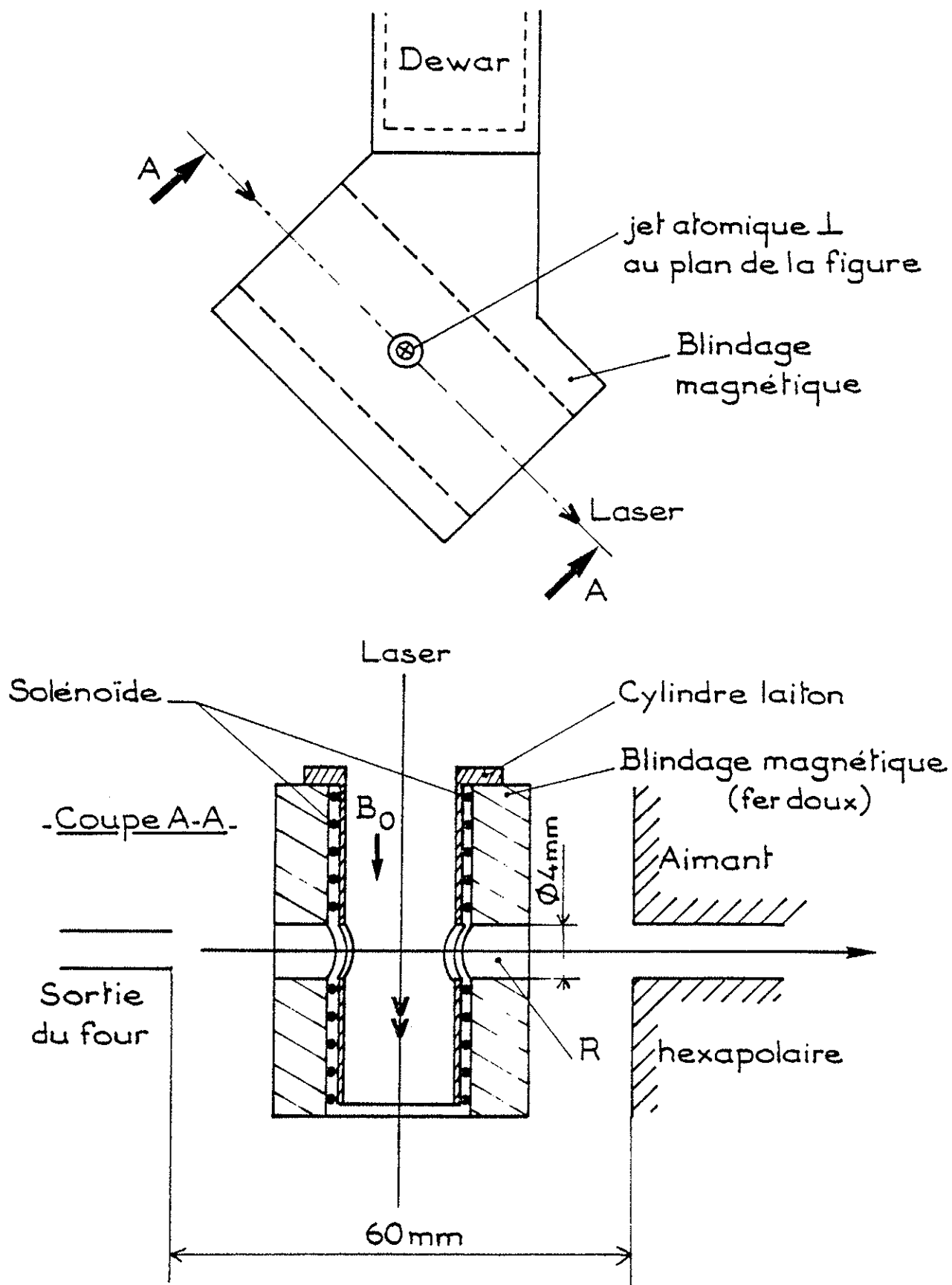


Figure II-2

La zone d'interaction du jet atomique avec le faisceau laser. Schéma d'ensemble.

fer doux percé de deux trous orthogonaux permettant, l'un le passage du jet atomique, l'autre le passage des faisceaux lumineux.

Son rôle est double :

D'une part, il impose une première limitation des dimensions géométriques du jet atomique, les atomes émis par le four dans des directions autres que la direction voulue venant se condenser sur la surface froide. On verra en fait dans les paragraphes suivants que cette première collimation réalisée par cet écran refroidi est un peu plus faible que la collimation imposée par l'entrefer de l'aimant hexapolaire et que c'est ce dernier qui, en définitive, détermine les dimensions du jet utile.

D'autre part, il protège la zone d'interaction des champs magnétiques alternatifs qui pourraient être produits par le courant de chauffage du four. Il annule aussi, dans la zone d'interaction, tous les champs parasites de directions et grandeurs mal connues (champ terrestre, champ de fuite de l'hexapole, etc.). Un solénoïde, bobiné sur un tube de laiton, est encastré dans le blindage. Il permet de créer un champ \vec{B}_0 , parallèle au faisceau laser et bien homogène dans toute la région d'interaction (fig. II-2). Un courant de 1 ampère dans le solénoïde crée un champ B_0 de 4,1 Gauss.

Lorsque les atomes du jet ont interagi avec la lumière, les populations des sous niveaux $|F, m_F\rangle$ de l'état fondamental se trouvent modifiées du fait des pompes optiques hyperfines et Zeeman. Cette variation de population est analysée par l'aimant hexapolaire pourvu que l'évolution de l'état magnétique de l'atome, lorsque celui-ci passe de la région d'interaction (champ faible) à la région d'analyse (champ fort), se fasse de façon adiabatique. Il faut donc éviter toute possibilité de transition non adiabatique (transitions de Majorana [24]). Pour cette raison on évite d'avoir une région de champ nul (ou trop faible) après l'excitation optique. En champ nul, en effet, tous les sous-niveaux Zeeman d'un même niveau hyperfin sont dégénérés et les transitions non adiabatiques sont inévitables. Au fur et à mesure que le champ \vec{B} augmente,

les niveaux $|F, m_F\rangle$ sont mieux séparés et il faut des variations de plus en plus brutales de l'orientation de \vec{B} pour induire des transitions non adiabatiques. Le champ \vec{B} est un champ statique, mais pour un atome se déplaçant avec une vitesse \vec{v} les variations spatiales de l'orientation de \vec{B} se traduisent, pour le champ vu par l'atome, par des variations temporelles d'autant plus rapides que \vec{v} est grande.

Considérons le cas simple d'un moment magnétique fixe $\vec{\mu} = \vec{\mu}_0$ ($I=0$, $J=\frac{1}{2}$). Ce moment $\vec{\mu}_0$ peut être soit parallèle à \vec{B} (état $|-\frac{1}{2}\rangle$), soit antiparallèle (état $|+\frac{1}{2}\rangle$). Tant que l'énergie d'interaction $W = -\vec{\mu}_0 \cdot \vec{B}$ est grande, le moment magnétique est rigoureusement lié à \vec{B} et suit ses variations d'orientation; par contre, lorsque \vec{B} diminue et tend vers zéro, le moment magnétique ne suit plus les changements d'orientation de \vec{B} , surtout s'ils sont rapides (voir fig. II-3). Quantitativement si Δl est la longueur sur laquelle se produit le retournement de \vec{B} et si v est la vitesse de l'atome considéré, pour avoir une évolution adiabatique on doit avoir :

$$\frac{\Delta l}{v} = \Delta t \gg \frac{\hbar}{\delta W} = \frac{\hbar}{2\mu_0 B}$$

où $\delta W = 2\mu_0 B$ est l'écart d'énergie entre les deux états propres $|+\frac{1}{2}\rangle$ et $|-\frac{1}{2}\rangle$.

Le jet atomique, après l'excitation optique, doit traverser le blindage magnétique (région notée R sur la figure II-2). Le bobinage du solénoïde est fait de telle façon que l'on puisse créer dans cette région R un petit champ magnétique \vec{B}_1 parallèle à \vec{B}_0 . L'allure du bobinage est indiquée sur la figure II-4; la boucle du solénoïde, qui devrait se refermer à hauteur du trou de sortie du blindage, se prolonge dans la région R sous la forme de deux fils parallèles et se referme à l'extérieur du blindage. A la sortie de celui-ci le champ \vec{B}_1 est relayé par les champs de fuite de l'aimant hexapolaire pour assurer l'évolution adiabatique des états magnétiques des atomes du jet. Nous

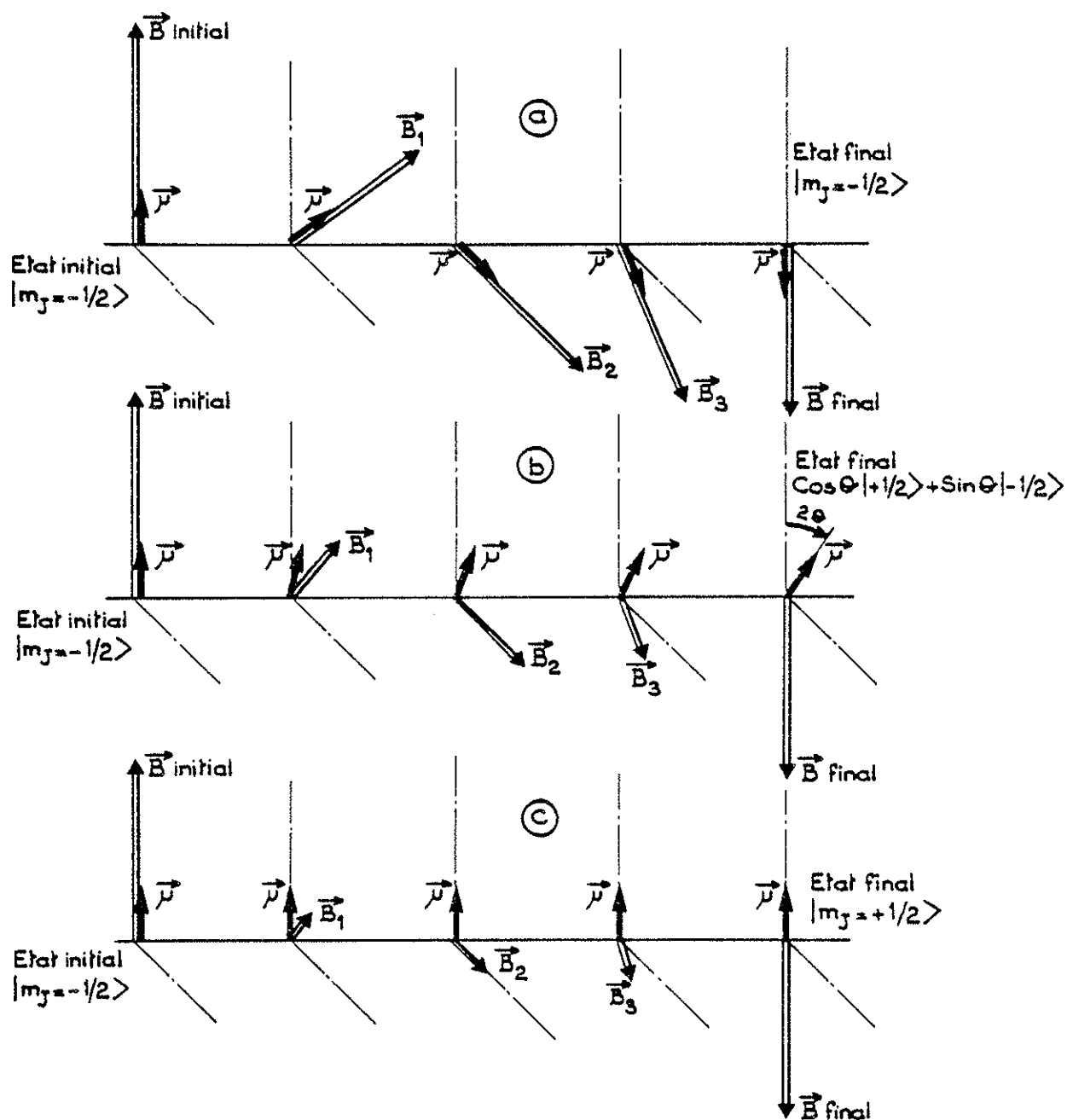


Figure II-3

Evolution adiabatique ou transition non adiabatique d'un moment magnétique dans un champ \vec{B} en fonction de l'amplitude du champ \vec{B}

- a - $|\vec{B}|$ fort : passage adiabatique.
- b - $|\vec{B}|$ trop faible : transition non adiabatique.
- c - $|\vec{B}|$ extrêmement faible : transition non adiabatique totale.

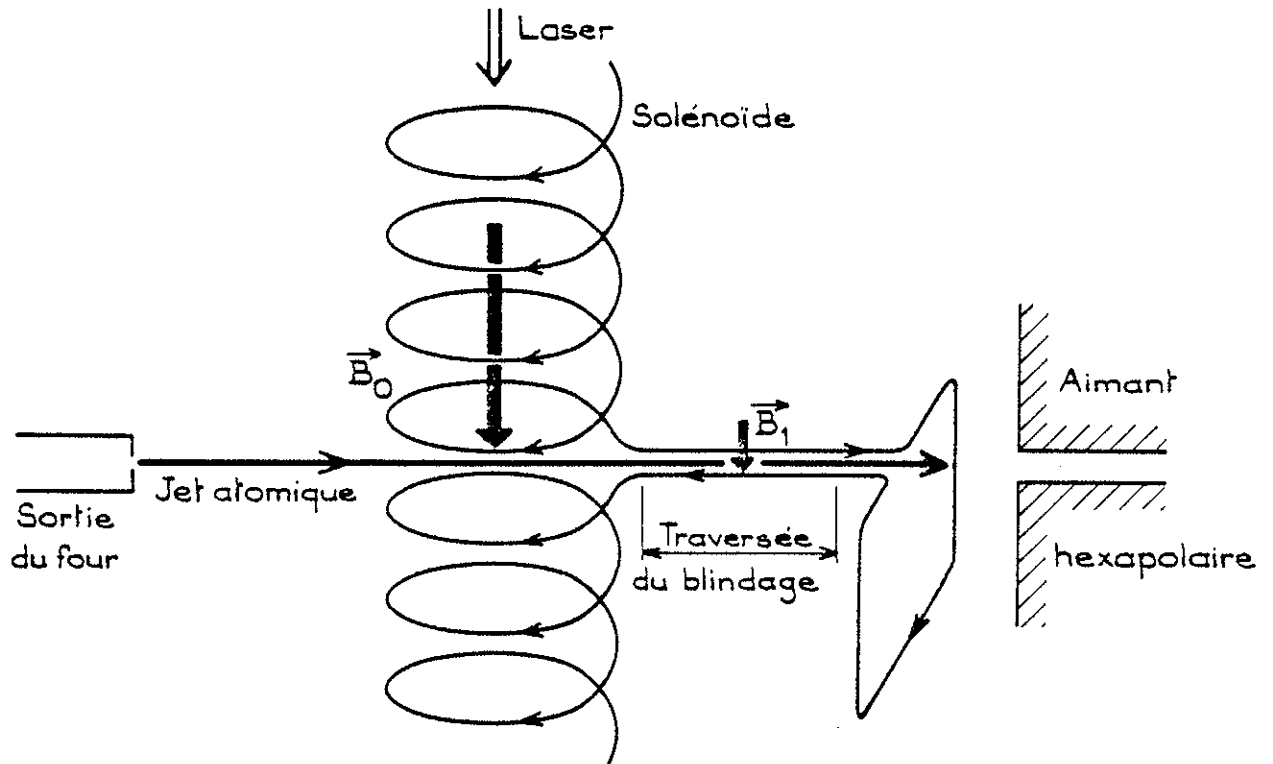


Figure II-4

Bobinage du solénoïde et champ de fuite \vec{B}_1
à travers le blindage magnétique.

avons constaté expérimentalement que l'amplitude des signaux de détection des résonances optiques ne varie plus dès que \vec{B}_1 dépasse 0,5 Gauss ce qui indique qu'avec la géométrie employée, dès que \vec{B}_1 est voisin de 0,5 Gauss, ou supérieur, les atomes ne subissent plus de transitions non adiabatiques (pour des vitesses thermiques de 1000 à 2000 m/s). Des détails techniques sur le bobinage du solénoïde sont indiqués sur la fig. II-5. Afin de mesurer le spin nucléaire I , il faut appliquer, après l'excitation optique et dans la région où règne le champ statique homogène \vec{B}_0 , un champ de radiofréquence perpendiculaire à \vec{B}_0 . Ce champ est produit par une petite bobine de 10 tours, bobinée sur un tube d'alumine et placé dans la région de champ uniforme \vec{B}_0 comme indiqué sur la figure II-5.

Le tube d'alumine est emboîté dans le tube de laiton qui porte le solénoïde.

Le rôle de la pièce de laiton P est d'agir comme un court circuit pour éviter tout champ r.f. dans une région où le champ statique n'est plus homogène.

D - L'AIMANT HEXAPOLAIRE.

Le champ inhomogène qui permet d'effectuer la sélection spatiale des états magnétiques est le champ dans l'entrefer d'un aimant hexapolaire. Les propriétés de focalisation d'un aimant hexapolaire, la comparaison avec les autres champs inhomogènes utilisables et le calcul de la focalisation dans le cas présent seront développés dans le chapitre III.

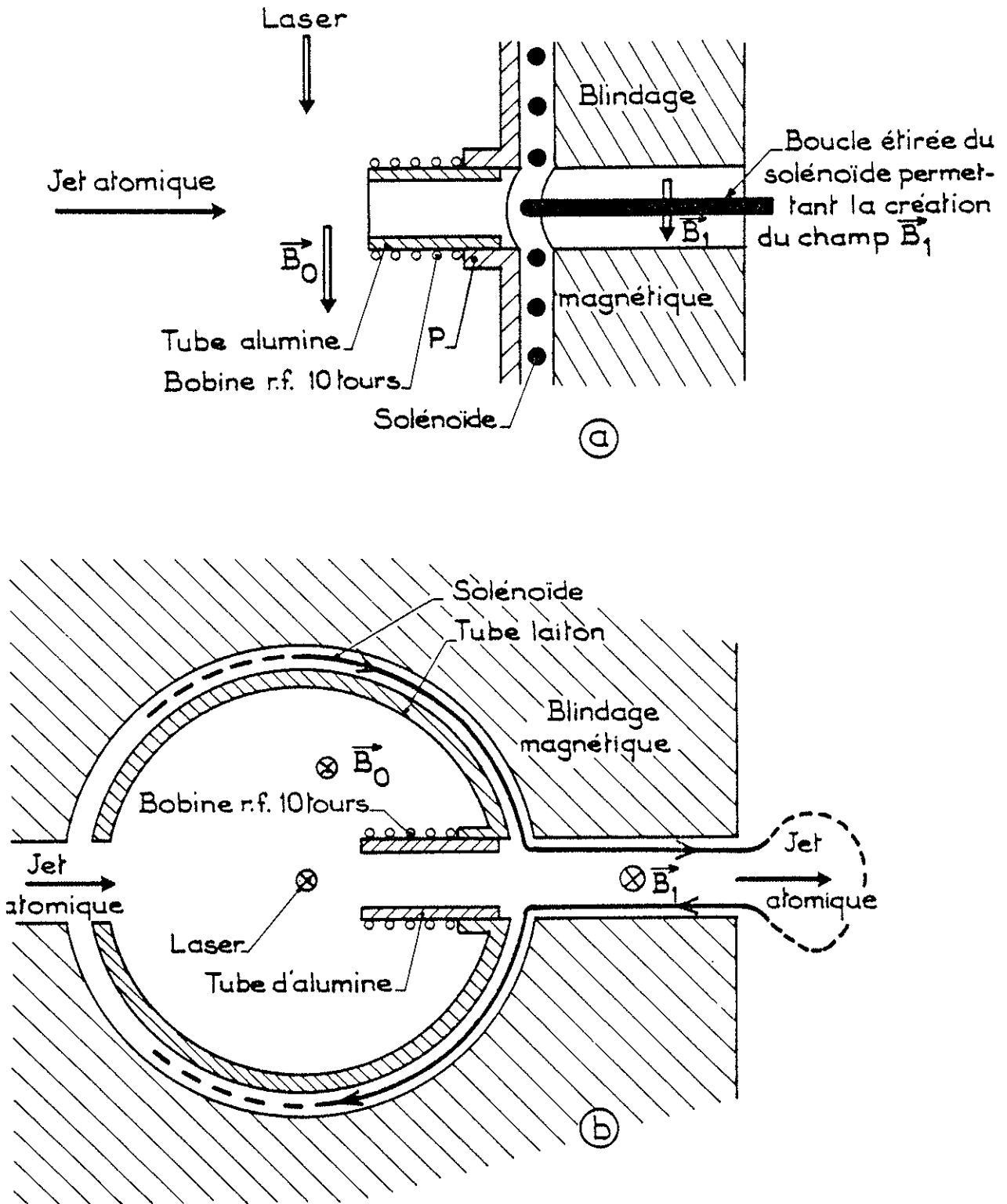


Figure II-5

Deux coupes orthogonales montrant la position de la bobine r.f. et les champs statiques \vec{B}_0 (homogène) et \vec{B}_1 (champ de fuite) dans la zone d'interaction et immédiatement après cette zone d'interaction.

Nous avons utilisé deux aimants hexapolaires commerciaux en série de 8,6 cm de longueur chacun. Le champ maximum sur les pièces polaires est de 9300 Gauss et le diamètre de l'entrefer est de 3,2 mm. La distance entre la sortie du four et l'entrée de l'aimant hexapolaire est de 6 cm. Comme on le verra dans le chapitre III, c'est cet entrefer qui intervient dans la définition de la collimation du jet.

E - Le SPECTROMETRE de MASSE.

Les atomes d'état magnétique $m_j = +\frac{1}{2}$ sont focalisés par l'aimant hexapolaire. Ils pénètrent dans un tube de rhénium coudé et chauffé qui se situe sur l'axe de symétrie du système à 20 centimètres environ de l'hexapole (voir fig. II-6). Les atomes de sodium s'ionisent par ionisation de surface à l'intérieur du tube de rhénium. Les ions de sodium ainsi produits sont guidés par le champ électrique créé par le courant de chauffage du tube vers la sortie aplatie du tube qui constitue la fente source d'un spectromètre de masse (voir figure II-6). Afin d'augmenter le rendement de l'ionisation de surface, une petite fuite d'air au voisinage du tube de rhénium permet d'envoyer sur celui-ci, en permanence, une petite quantité d'oxygène afin d'augmenter son potentiel d'extraction [25], ce qui permet d'obtenir un rendement proche de l'unité. Il convient de noter que, l'ionisation de surface étant un phénomène caractéristique des atomes alcalins (faible potentiel d'ionisation), parmi tous les atomes produits dans le four seuls les isotopes d'atomes alcalins sont ionisés et pénètrent dans le spectromètre de masse sous forme d'ions. Ceci permet d'éliminer tous les autres atomes qui pourraient avoir la même masse que l'isotope de sodium étudié.

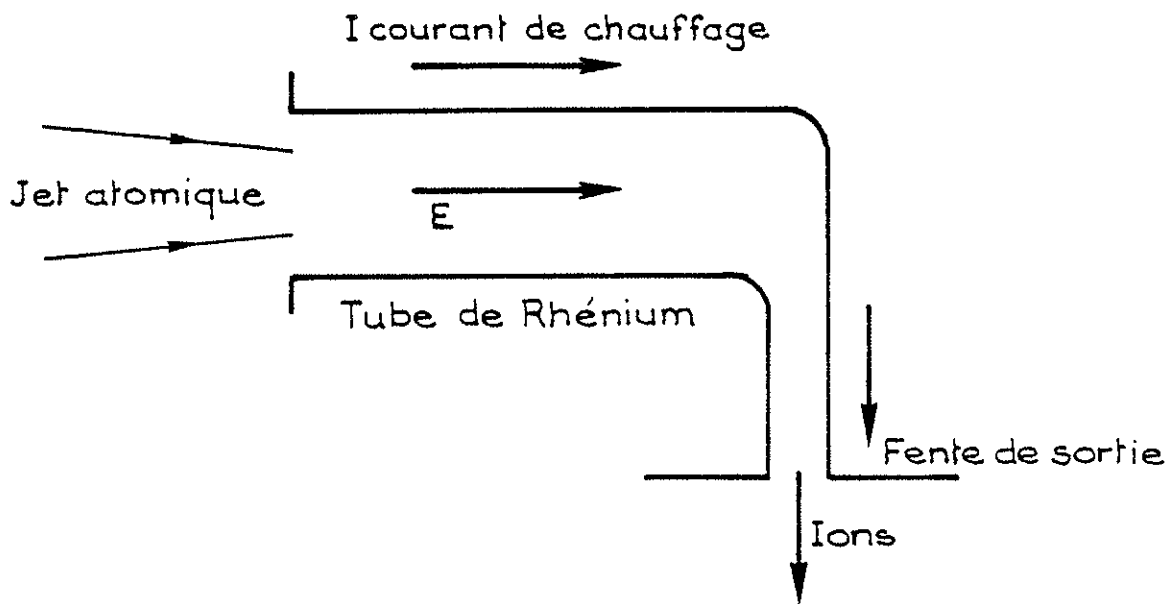
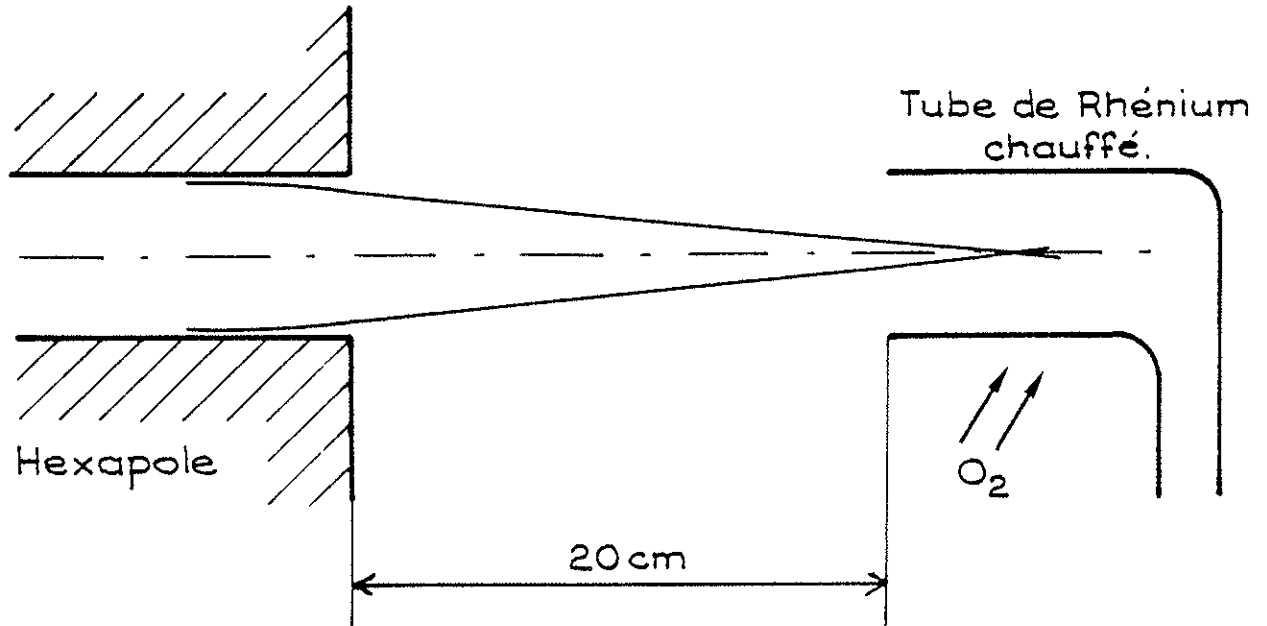


Figure II-6

Détails de l'ioniseur par ionisation de surface.

\vec{E} champ électrique créé par \vec{I} .

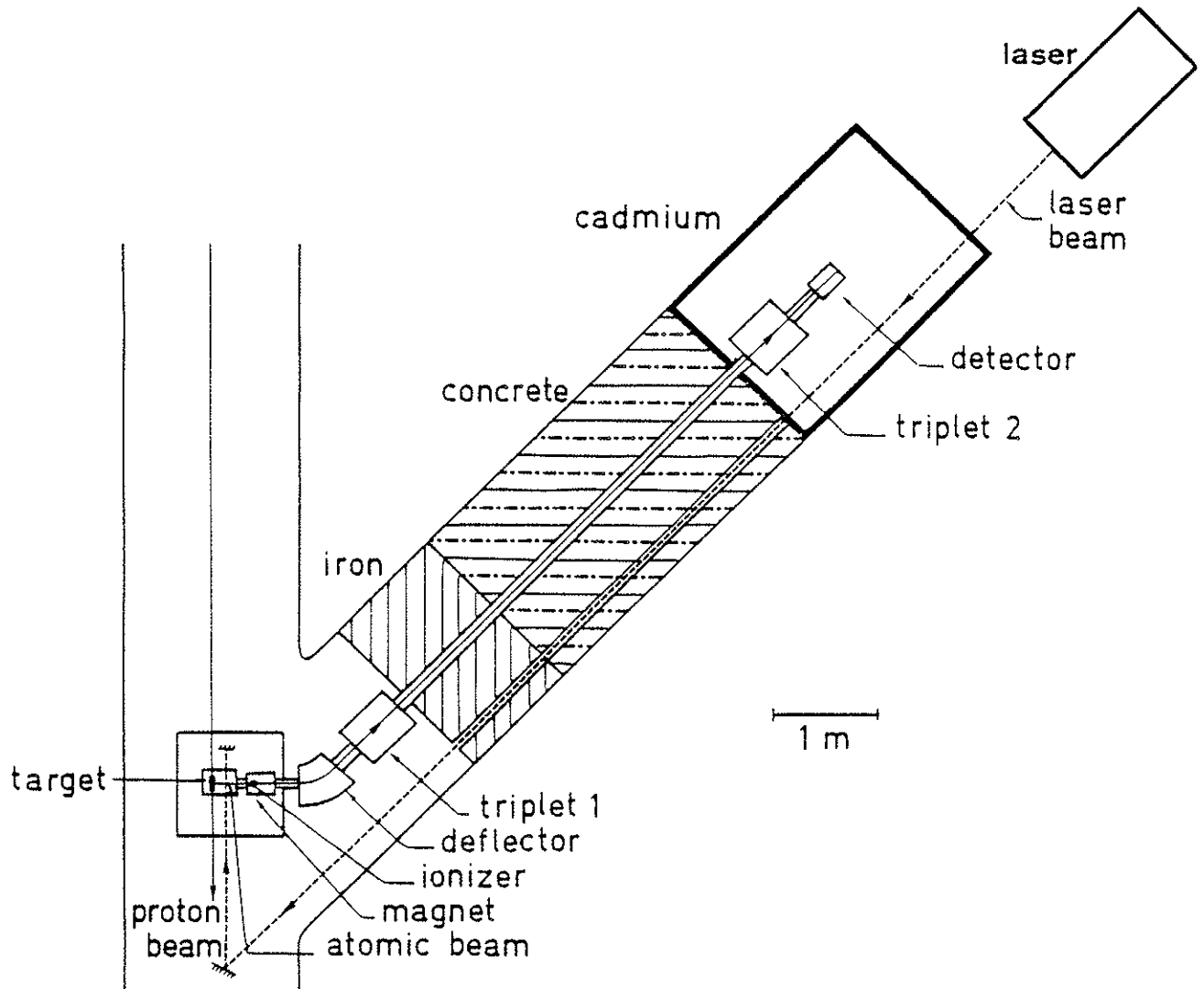


Figure II-7

- Spectromètre de masse et ligne de transport.
- Schéma d'implantation de l'expérience sur l'accélérateur (P. S.) .

Le spectromètre de masse permet ensuite de choisir, parmi tous les isotopes de sodium issus du four, un isotope donné. En sortie du spectromètre de masse les ions reçus correspondent à un seul isotope de sodium.

Afin de s'affranchir du bruit de fond dû à la radioactivité ambiante, les ions sélectionnés par le spectromètre de masse sont conduits par une ligne de transport électrostatique de l'autre côté du blindage où le système de détection et de comptage des ions est installé (voir figure II-7) dans une zone de faible bruit.

F - Le LASER ; le CONTROLE de la FREQUENCE du LASER.

Les mesures de déplacements isotopiques et de structures hyper-fines que l'on se propose de faire doivent être très précises : à titre d'exemple, si l'on désire mettre en évidence dans le cas des isotopes de sodium un effet de volume dans les déplacements isotopiques, il faut mesurer ceux-ci à une précision de l'ordre du mégahertz, alors qu'ils sont de l'ordre du gigahertz ou supérieurs. Par ailleurs, à cause du petit nombre d'atomes disponibles, pour les isotopes les plus lourds en particulier, il faut, pour chaque point de mesure, intégrer pendant des temps assez longs pouvant dépasser la minute.

L'enregistrement d'une structure complète peut, dans ces conditions, demander plusieurs heures.

Deux exigences doivent donc être simultanément satisfaites :
d'une part, il faut être capable de balayer finement la fréquence du

laser et de mesurer avec précision les variations de fréquence au cours d'un balayage ;

d'autre part, en l'absence de balayage, le laser doit posséder une excellente stabilité en fréquence à long terme.

Il est possible de satisfaire à ces deux conditions en utilisant un dispositif appelé "sigmamètre" et mis au point par P. JUNCAR et J. PINARD [26],[27]. Ce dispositif permet de balayer la fréquence du laser pas à pas par sauts de $n \times 0,9375$ MHz ($n = 1, 2, 4$ ou 8) et de stabiliser cette fréquence à chaque pas.

Le laser utilisé dans les expériences les plus récentes est un laser à colorant commercial (Coherent Radiation, Modèle 599), fonctionnant en régime monomode et balayable continuellement sur 30 GHz.

Une partie de la lumière laser (nombre d'onde σ) est envoyée dans le sigmamètre. La partie optique de ce dispositif consiste en un double interféromètre de type Michelson de différence de marche $\delta = 2$ m (figure II-8). En sortie de l'interféromètre, deux photodiodes détectent les intensités lumineuses correspondant aux deux polarisations orthogonales. Les signaux électriques obtenus sont de la forme $I_0(1 + \sin 2\pi\sigma\delta)$ et $I_0(1 + \cos 2\pi\sigma\delta)$. Une troisième photodiode fournit un signal proportionnel à I_0 . Ces trois signaux électriques déterminent (à 2π près) la quantité $\Phi = 2\pi\sigma\delta$. Cette quantité est comparée à une phase de référence Φ_0 et la différence $\Phi - \Phi_0$ sert de signal d'erreur pour le système de contrôle de fréquence du laser à colorant CR 599. Le nombre d'ondes σ de la lumière laser est ainsi stabilisé "sur le sigmamètre" ($\Phi = \Phi_0$). En changeant la phase de référence Φ_0 par sauts $\Delta\Phi_0 = \frac{2p\pi}{160}$ (où p est un entier), on peut balayer le nombre d'ondes σ , donc la fréquence ν du laser. Ce balayage peut se faire dans les deux sens (ν croissant ou décroissant). A un saut élémentaire $\Delta\Phi_0 = \frac{2\pi}{160}$ correspond un saut $\Delta\sigma = \frac{\Delta\Phi_0}{2\pi\delta} = \frac{1}{32000} \text{ cm}^{-1}$, soit $\Delta\nu = 0,9375$ MHz. Pour assurer une excellente stabilité à long terme,

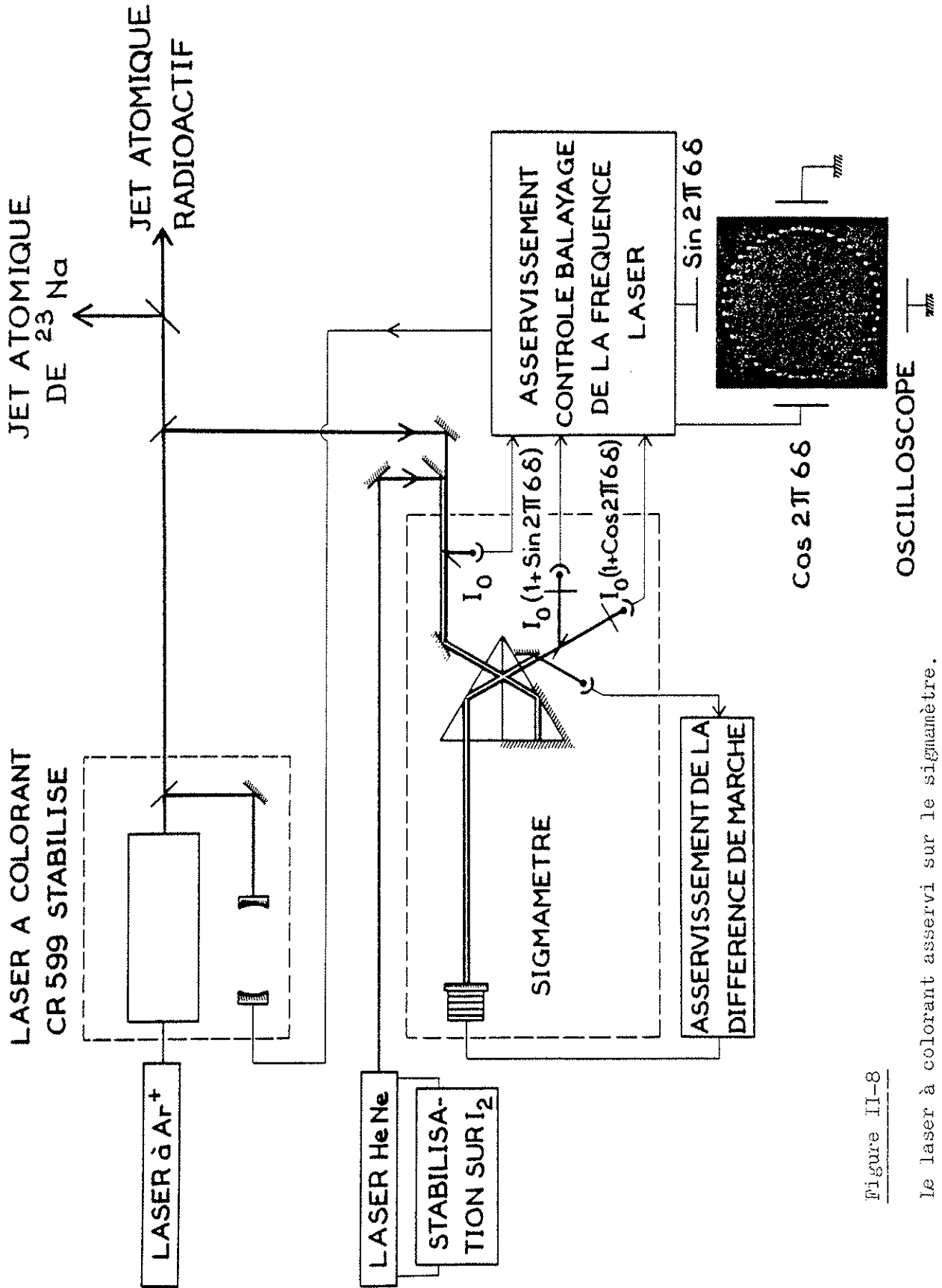


Figure II-8

Le laser à colorant asservi sur le signamètre.

il faut évidemment maintenir δ rigoureusement constant. Pour cela, on utilise un laser He-Ne asservi sur une raie de l'iode [28]. Le faisceau lumineux de ce second laser est envoyé dans le sigmamètre parallèlement au faisceau du laser à colorant. Une photodiode analyse l'état d'interférence en sortie du sigmamètre et fournit un signal électrique qui permet d'asservir la différence de marche δ de telle façon que l'état d'interférence reste inchangé. Le laser et son dispositif d'asservissement ont été testés en observant le signal de fluorescence d'un jet auxiliaire de ^{23}Na suffisamment collimaté pour que la largeur Doppler résiduelle soit inférieure à la largeur naturelle. Ces expériences ont montré que la fréquence de la lumière laser avait une reproductibilité et une stabilité à long terme meilleure que 1 MHz.

Dans l'expérience effectuée sur les atomes radioactifs, la lumière laser est envoyée simultanément sur le jet d'atomes radioactifs et sur le jet auxiliaire de sodium naturel afin d'obtenir une fréquence de référence pour la mesure des déplacements isotopiques. Pour chaque jet atomique le faisceau lumineux est réglé perpendiculaire au faisceau atomique. Afin d'éviter tout déplacement de fréquence des résonances dû à un défaut d'orthogonalité entre le faisceau lumineux et le faisceau atomique, le pinceau lumineux est renvoyé sur lui-même ; un défaut d'orthogonalité se traduit alors par un élargissement du signal de résonance sans déplacement de la fréquence centrale. Il faut enfin noter que, le laser devant être accessible aux expérimentateurs pendant la durée de l'expérience et le jet fournissant les isotopes instables se trouvant au contraire dans une zone hautement radioactive, il faut prévoir le transport de la lumière laser sur une longueur de plus de 15 mètres, dont une grande partie à travers un blindage de fer et de béton (figure II-7).

Ceci est réalisé en utilisant un télescope et un certain nombre de miroirs dont quelques-uns, situés dans la zone radioactive, sont munis de télécommandes.

III - CHOIX D'UN AIMANT HEXAPOLAIRE ET PROPRIETES QUI EN DECOULENT.

A - DIFFERENTS TYPES de CHAMP INHOMOGENE UTILISABLES.

A-1 - INTRODUCTION.

Plusieurs types de champ inhomogène ont été utilisés par divers auteurs et sont décrits dans la littérature. Les premières expériences de déflexion magnétique d'un jet atomique ont été réalisées par STERN et GERLACH [29][30]. Ils utilisaient un champ magnétique inhomogène dont le gradient n'était ni constant sur toute la hauteur du jet, ni même facilement calculable, ce qui rendait l'interprétation des résultats délicate.

RABI, KELLOGG et ZACHARIAS [31] ont obtenu un champ magnétique de gradient uniforme sur toute la section droite du jet atomique en utilisant le champ magnétique créé par deux fils parallèles parcourus en sens inverse par des courants de même intensité. Puis MILIMAN, RABI et ZACHARIAS [32] ont utilisé des aimants dont la forme des pièces polaires était telle que le champ magnétique dans l'entrefer était analogue au champ précédent créé par les deux fils. Ceci leur a permis

d'obtenir des champs et des gradients de champ beaucoup plus intenses. Ces aimants à gradient uniforme sont des aimants défecteurs.

Plus récemment, FRIEDBURG [33] et BENNEWITZ et PAUL [34] ont introduit l'usage d'aimants focalisateurs : les aimants hexapolaires. Les propriétés focalisatrices de ces aimants ont permis de travailler sur des jets atomiques peu denses en remplaçant dans l'"appareil de Rabi classique" les deux aimants défecteurs A et B par des aimants hexapolaires [35]. Il est apparu, par la suite, que cette solution n'était pas la meilleure et qu'il valait mieux conserver un aimant hexapolaire comme aimant A et utiliser comme aimant B soit un aimant quadrupolaire [36], soit un aimant dipolaire défecteur dont le gradient est uniforme sur une large partie de l'entrefer [37] que nous appellerons aimant dipolaire de type "quadrupolaire" pour le distinguer de l'aimant dipolaire type "deux fils" utilisé par RABI. Plutôt que de garder cet ordre chronologique pour présenter les différents champs magnétiques inhomogènes utilisables, nous les grouperons en deux classes dont les propriétés sont clairement différentes.:

- Les aimants dipolaires, qui présentent un plan de symétrie et qui sont des aimants défecteurs ;
- Les aimants 2n-polaires ($n > 1$), qui présentent un axe de symétrie et qui sont des aimants focalisateurs.

A-2 - LES AIMANTS DIPOLAIRES.

Historiquement ce sont les plus anciens puisque l'expérience de STERN et GERLACH a été faite avec un aimant dipolaire. On a ensuite cherché à obtenir des champs inhomogènes tels que le gradient de champ soit à peu près constant dans une partie importante de l'entrefer. Un choix judicieux de la forme des pièces polaires permet d'obtenir ce résultat. Dans ces conditions (gradient constant) la force qui s'exerce sur un atome ne dépend pas de sa position dans le champ magnétique et

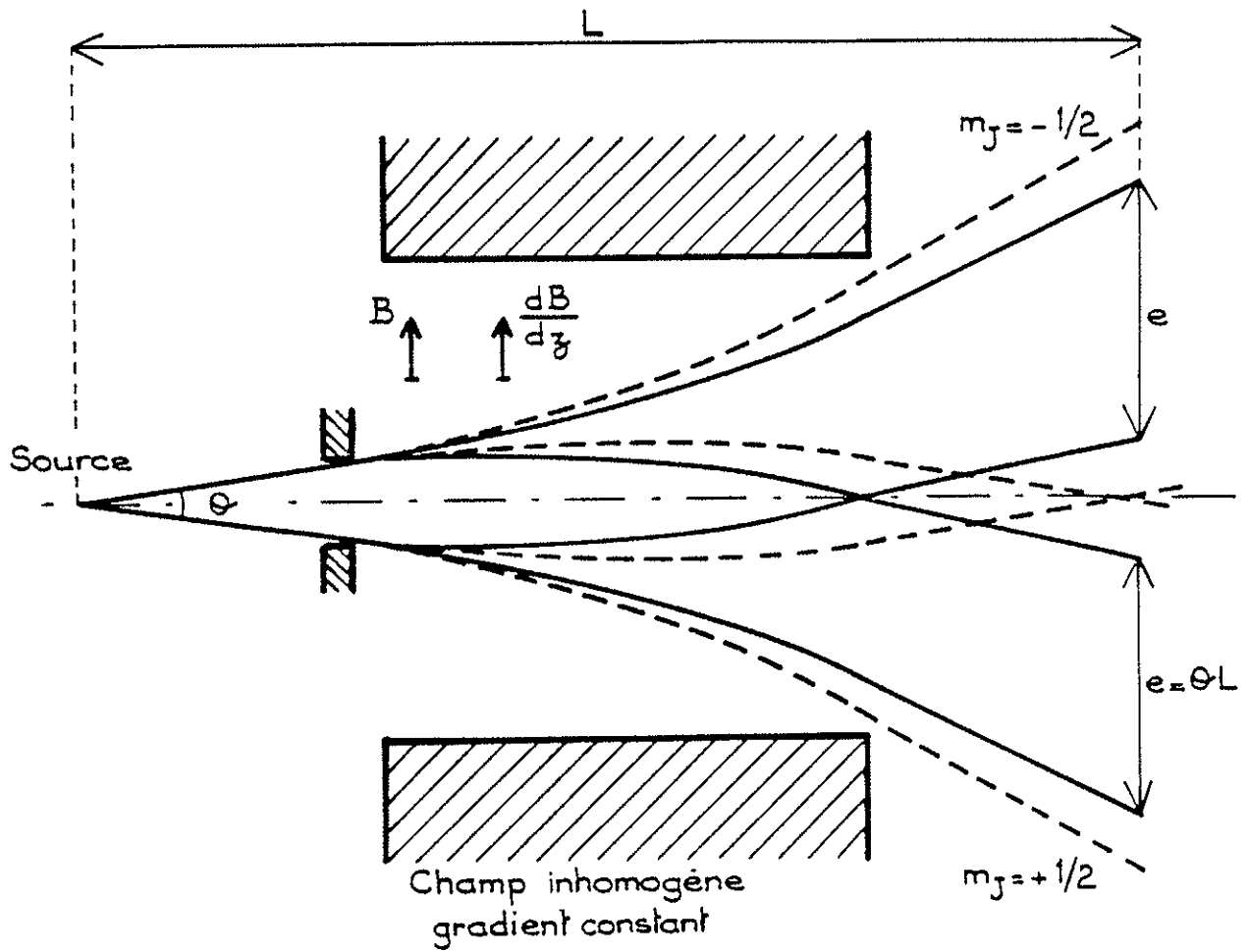


Figure III-1

Trait plein : jet monocinétique .

Trait interrompu : jet thermique.

ne dépend que de la valeur de m_j . Par conséquent, un jet atomique monocinétique sera simplement défléchi par le champ magnétique sans modification de ses autres grandeurs géométriques (épaisseur, par exemple) (figure III-1). Ce sont donc des aimants défecteurs.

Dans le cas d'un jet thermique, du fait de la distribution des vitesses dans le jet, la déflexion produite par le champ inhomogène n'est plus la même pour tous les atomes. Les atomes lents sont plus déviés que les atomes rapides, ce qui produit un élargissement du jet autour de la déflexion moyenne (figure III-1). Plusieurs formes de pièces polaires peuvent être utilisées ; leurs sections droites sont représentées sur la figure III-2. La figure III-2a représente l'entrefer le plus couramment utilisé : il s'agit de l'aimant dipolaire type "deux fils" mis au point par MILLMAN, RABI et ZACHARIAS [32]. Les sections droites des pièces polaires sont des portions de cercles. Ces cercles se coupent en deux points I et J ($IJ = 2a$). Le champ produit dans l'entrefer est analogue au champ créé par deux courants égaux et de sens opposés circulant dans des fils passant par I et J et perpendiculaires au plan de la figure III-2a. Le point M, situé sur Ox à une distance $1,2a$ de l'origine est au centre d'une région où le gradient peut être considéré comme constant. Cette région, représentée sur la figure, a la forme d'un rectangle très allongé ($\pm 0,7a$ suivant Oy, $\pm 0,05a$ suivant Ox) [38], [39]. Le gradient variant relativement vite suivant la direction Ox, il peut être intéressant d'avoir un gradient constant sur une plus grande surface, par exemple dans le cas des jets peu denses.

Une autre configuration des pièces polaires utilisée par BERNSTEIN, HABERSTROH, HAMILTON, POSNER et SNIDER [37] est représentée sur la fig. III-2b. Les sections droites sont des portions de deux hyperboles équilatérales ayant les mêmes asymptotes ; en pratique on se contente d'un tracé approché composé de portions de droites et de cercles. Le champ est minimum au point m, maximum au point M et le gradient de champ est constant en module dans tout l'entrefer. La direction du gradient en

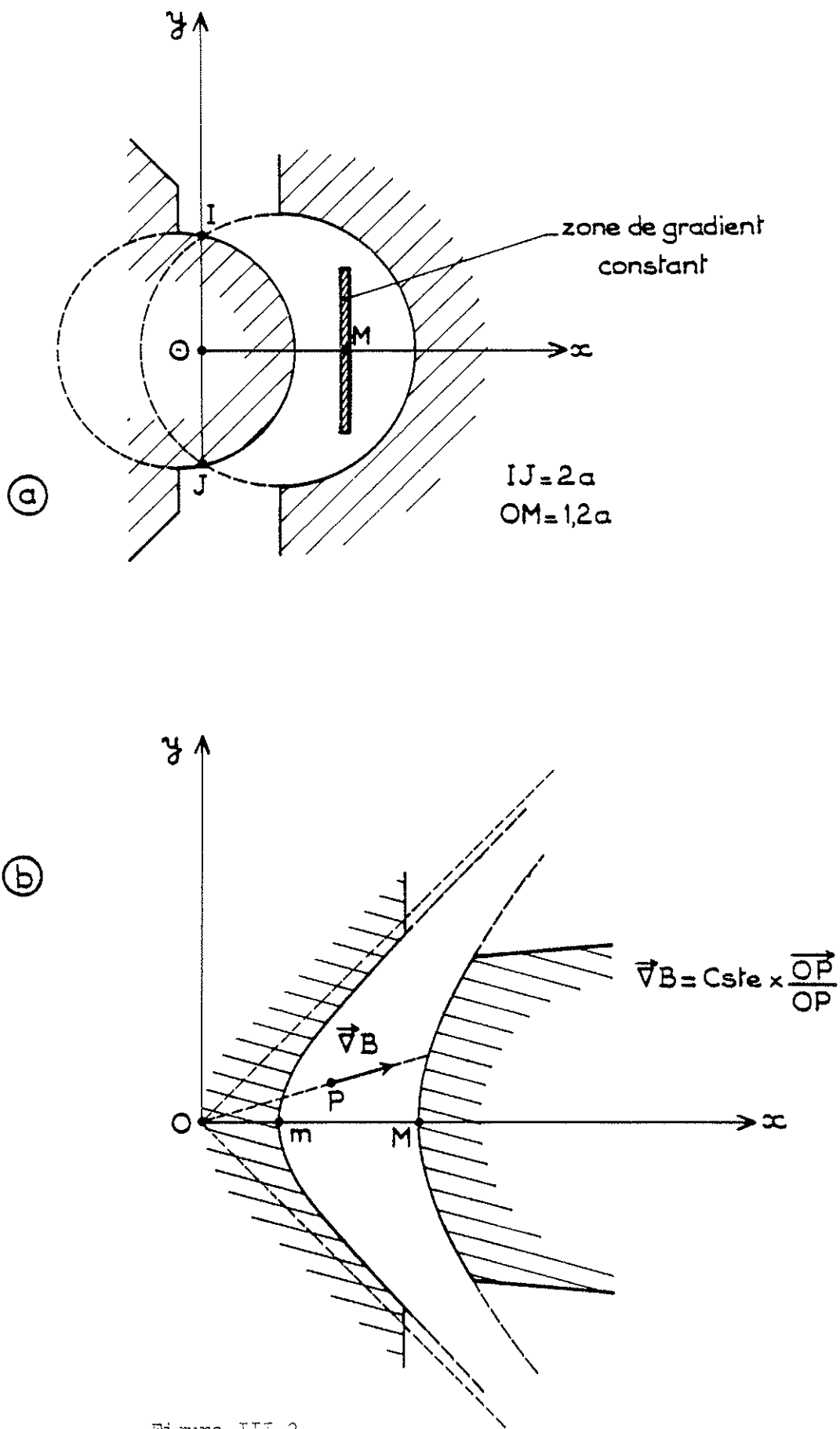


Figure III-2

Aimants défecteurs (Aimants à gradient constant)

a - type "deux fils"

b - type "quadrupolaire"

un point P est la direction du vecteur \vec{OP} : $\vec{\nabla}|\vec{B}| = C \text{ste} \times \frac{\vec{OP}}{OP}$. Si la hauteur du jet est petite devant la distance Om , le gradient peut être considéré comme constant en amplitude et direction, sinon seule la direction n'est pas constante. Cette configuration de champ défecteur est souvent appelée champ "quadrupolaire". Le calcul du champ, du gradient et l'explication de cette dénomination apparaîtront clairement dans le paragraphe suivant.

A-3 - LES AIMANTS 2n-POLAIRES.

Les aimants quadrupolaires ($n=2$) et hexapolaires ($n=3$) ont été étudiés pour la première fois par FRIEDBURG [33] et BENNEWITZ et PAUL [34]. Leurs propriétés de focalisation les ont fait souvent préférer aux aimants dipolaires défecteurs, dans le cas des jets peu denses en particulier [35],[37],[40].

a) Calcul du champ et du gradient.

Un champ magnétique 2n-polaire invariant par translation le long de l'axe Oz est défini en coordonnées cylindriques (r, φ, z) par un potentiel magnétique $\Psi = C r^n \cos n\varphi$ où C est une constante. Le champ magnétique \vec{B} se calcule d'après la formule $\vec{B} = -\vec{\nabla} \Psi$. En utilisant les vecteurs unitaires \vec{u} et \vec{v} définis sur la figure III-3a on obtient :

$$\vec{B} = -n C r^{n-1} [\cos n\varphi \vec{u} - \sin n\varphi \vec{v}] \quad (1)$$

$$\text{d'où} \quad |\vec{B}| = n|C|r^{n-1} \quad . \quad (2)$$

Le module du champ magnétique ne dépend que de r .

Pour créer un tel champ on peut utiliser un aimant ou un électroaimant comprenant 2n poles alternativement nord et sud. Les pièces polaires sont invariantes par translation parallèlement à Oz . Les courbes qui délimitent les sections droites des pièces polaires "nord" doivent

correspondre à des lignes équipotentiellles $\Psi = \Psi_0 > 0$, les sections droites des pièces polaires "sud" étant limitées par les courbes équipotentiellles $\Psi = -\Psi_0$. L'aimant ainsi obtenu crée dans son entrefer un champ magnétique donné par la formule (1).

La figure III-3b et c représente dans le cas $n=2$ (quadrupole) et $n=3$ (hexapole) l'allure des équipotentiellles, des courbes de champ et des pièces polaires permettant de créer ces champs dans l'entrefer. A l'intérieur du cercle de rayon r_0 le champ créé correspond bien au champ calculable d'après la formule (1).

La force qui s'exerce sur un atome, définie au chapitre I, vaut $\vec{F} = \mu_{\text{eff}} \vec{\nabla} |\vec{B}|$, soit :

$$\vec{F} = \mu_{\text{eff}} n(n-1) |C| r^{n-2} \vec{u}$$

La force est radiale, dirigée vers le centre si μ_{eff} est négatif, vers l'extérieur si μ_{eff} est positif. Dans l'hypothèse du "champ fort" $\mu_{\text{eff}} = -\mu_0$ pour les états $m_J = +\frac{1}{2}$ ils sont donc attirés vers l'axe central du champ $2n$ -polaire. Les états $m_J = -\frac{1}{2}$ correspondant à $\mu_{\text{eff}} = \mu_0$ sont au contraire repoussés vers l'extérieur.

b) $n=2$: champ quadrupolaire.

$$|\vec{B}| = 2|C|r \quad \text{et} \quad \vec{F} = \mu_{\text{eff}} 2|C|\vec{u} .$$

La force est radiale et d'amplitude constante (indépendante de r).

Les lignes équipotentiellles forment un réseau d'hyperboles équilatères $\Psi = r^2 \cos 2\varphi = x^2 - y^2 = \text{cste}$.

Les lignes de champ forment un réseau orthogonal au précédent (voir figure III-3b).

On reconnaît dans la forme des équipotentiellles la forme des pièces polaires du deuxième champ dipolaire décrit dans le précédent paragraphe

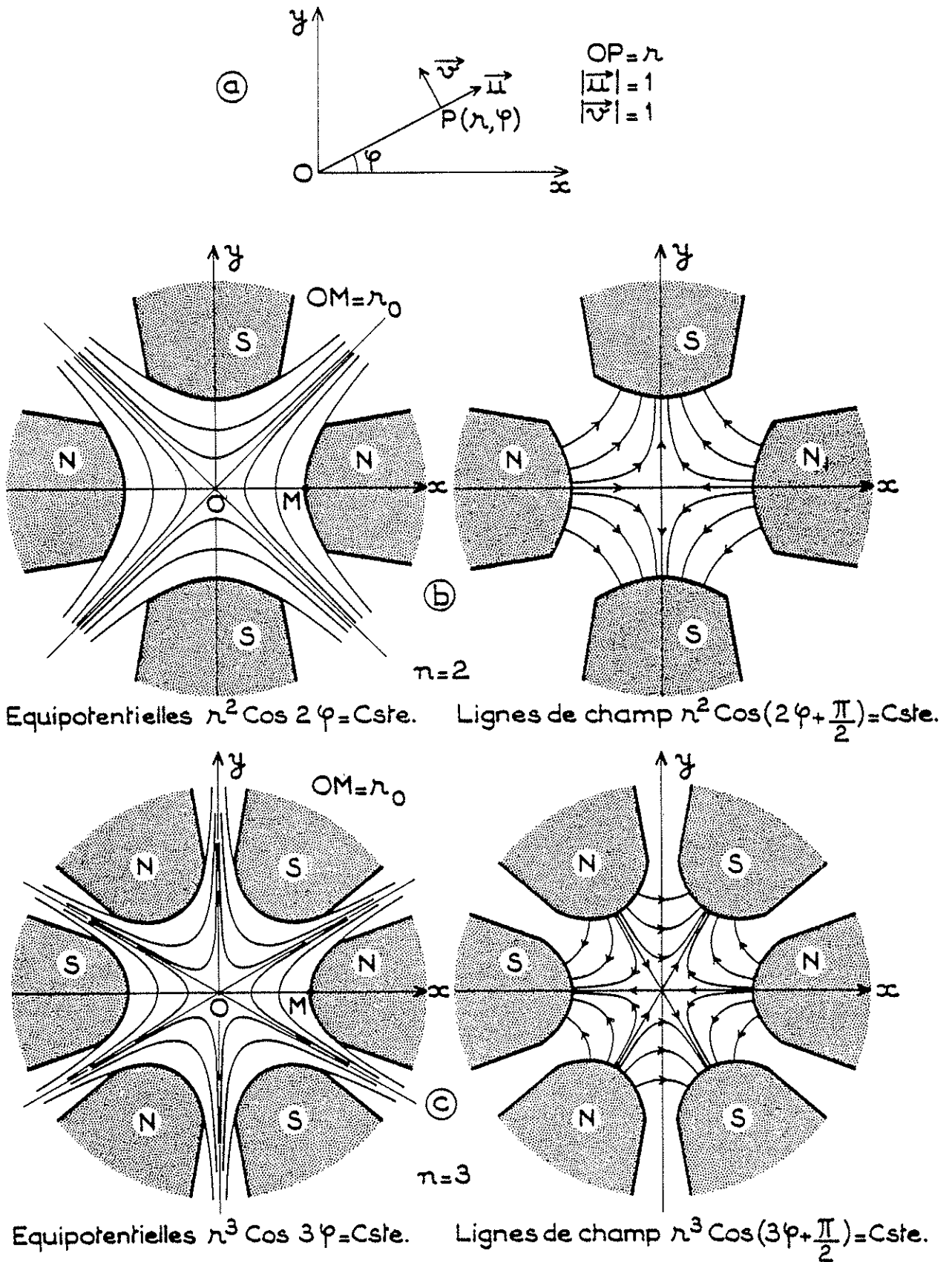


Figure III-3

Aimants focalisateurs - Equipotentielles et lignes de champs.

b - $n=2$ aimant quadrupolaire

c - $n=3$ aimant hexapolaire .

(champ dit "quadrupolaire"). Le calcul fait ici fournit donc la solution pour le champ magnétique (amplitude et lignes de champ) dans l'entrefer de l'aimant dipolaire de type "quadrupolaire". On peut vérifier que l'on trouve effectivement les résultats annoncés dans le paragraphe précédent.

La force étant constante, les trajectoires sont des portions de parabole. En fait, la force n'est constante qu'en amplitude. Du fait de la symétrie cylindrique du problème, les trajectoires des atomes $m_J = +\frac{1}{2}$ sont courbées vers le centre de l'aimant, celles des atomes $m_J = -\frac{1}{2}$ sont défléchies vers l'extérieur. La loi de force n'a pas la dépendance correcte en r pour qu'il y ait formation d'image mais il y a cependant "focalisation" pour les états $m_J = +\frac{1}{2}$ et "défocalisation" pour les autres (voir figure III-4a).

c) $n=3$ - Champ hexapolaire.

$$|\vec{B}| = 3|C|r^2 \quad \text{et} \quad \vec{F} = \mu_{\text{eff}} 3 \times 2 \times |C|r \vec{u}$$

La face est radiale et d'amplitude proportionnelle à r . Les lignes équipotentielles et les lignes de champ sont représentées sur la figure III-3c. Dans l'approximation du champ fort ($\mu_{\text{eff}} = \pm \mu_0$) la loi de force est telle qu'il y a formation d'image pour un jet monocinétique. Ceci est illustré sur la figure III-4b : quel que soit l'angle θ , un atome $m_J = +\frac{1}{2}$ de vitesse v qui passe par le point M passe par le point M' (image de M). Il y a donc focalisation avec formation d'image pour les atomes $m_J = +\frac{1}{2}$. La position du point M' dépend malheureusement de la vitesse des atomes et il y a par conséquent une aberration "chromatique" dont on ressent les effets à cause de la distribution thermique des vitesses des atomes du jet.

Par contre la "défocalisation" pour les atomes $m_J = -\frac{1}{2}$ est plus dispersive qu'avec un aimant quadrupolaire ; en effet, plus un atome

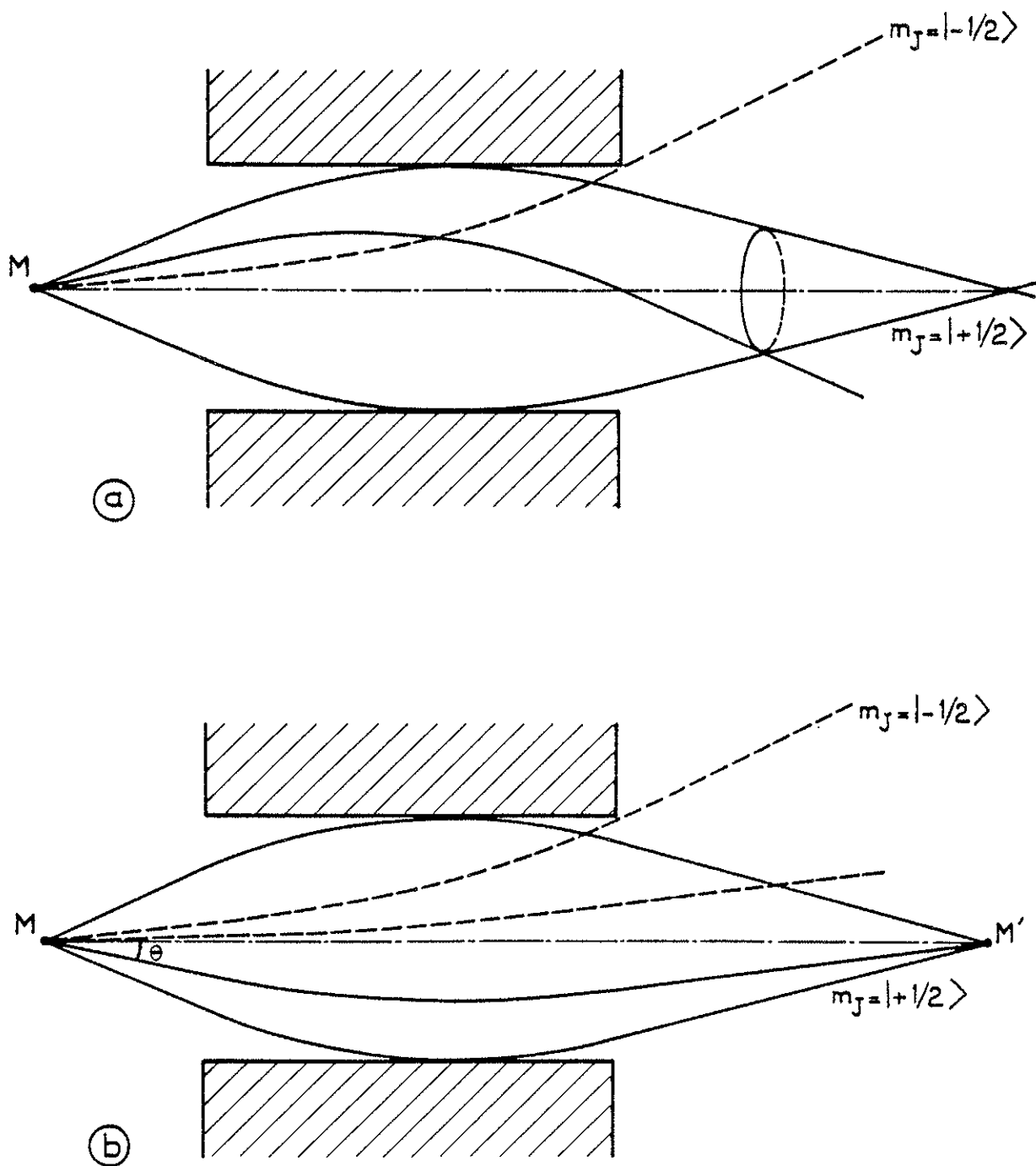


Figure III-4

- a - Champ quadrupolaire : "focalisation" sans formation d'image.
- b - Champ hexapolaire : "focalisation" avec formation d'image.

$m_J = -\frac{1}{2}$ est loin de l'axe de symétrie, plus il est soumis à une force importante qui le pousse vers l'extérieur.

d) Comparaison des champs hexapolaire et quadrupolaire.

Tous les champs $2n$ -polaires ont des propriétés focalisatrices pour les états $m_J = +\frac{1}{2}$, défocalisatrices pour les états $m_J = -\frac{1}{2}$.

- Si l'on cherche à focaliser le mieux possible les états $m_J = +\frac{1}{2}$, le meilleur champ est le champ hexapolaire car la loi de force permet la formation d'image.

Cependant le champ quadrupolaire peut parfois être plus avantageux que le champ hexapolaire pour d'autres raisons :

- A entrefers de rayons r_0 égaux, le champ sur les pièces polaires (champ maximum) B_0 est, pour des raisons techniques, plus fort pour un aimant quadrupolaire que pour un aimant hexapolaire (B_0 fonction décroissante de n).

- De plus, si B_0 est le champ sur les pièces polaires, le champ dans un aimant hexapolaire est $B = B_0 \frac{r^2}{r_0^2}$, le champ dans un aimant quadrupolaire est $B = B_0 \frac{r}{r_0}$. Pour une structure hyperfine donnée, il existe un champ B_{\min} tel que si $B < B_{\min}$ on ne peut plus utiliser l'approximation de champ fort (voir chapitre I).

A B_0 et r_0 fixes, le rayon r_{\min} correspondant est plus grand dans un hexapole que dans un quadrupole.

Pour ces deux raisons, si les structures hyperfines sont très grandes (approximation de champ fort difficile à atteindre), il est préférable d'utiliser un aimant quadrupolaire plutôt qu'un aimant hexapolaire.

Si l'on cherche à recueillir à la sortie de l'aimant les atomes correspondant à $m_J = -\frac{1}{2}$ il est préférable d'utiliser un aimant quadrupolaire qui les défocalise moins fortement, plutôt qu'un aimant hexapolaire.

Remarques

- ① Les avantages et inconvénients indiqués ci-dessus montrent qu'il n'y a pas d'avantages à attendre des aimants $2n$ -polaires, $n > 3$.
- ② Il est impossible d'envisager un champ magnétique qui focaliserait les atomes $m_J = -\frac{1}{2}$ (il faudrait un champ magnétique maximum au centre).

B - COMPARAISON de la METHODE UTILISEE et de la METHODE de RESONANCE MAGNETIQUE INTRODUITE par RABI.

B-1 - LA METHODE RESONNANTE DE RABI (RESONANCE MAGNETIQUE).

Dans la méthode de RABI [41], les atomes du jet traversent successivement trois régions notées conventionnellement A, C, B. Les régions A et B sont des régions de champ magnétique fort et inhomogène (figure III-5) (aimants défecteurs). Les gradients de champ sont de sens opposés, comme indiqué sur la figure (5a). Les atomes, défléchis par l'aimant A voient leur trajectoire redressée par l'aimant B et sont recueillis par le détecteur D pourvu que leur état magnétique (valeur de m_J) n'ait pas changé dans la région intermédiaire C. Dans cette région C règne un champ statique homogène et l'on peut appliquer un champ de radiofréquence. Si l'on induit une transition de radiofréquence provoquant un changement d'état magnétique (changement de m_J) les atomes dont l'état magnétique a été modifié ne sont plus collectés par le détecteur. On observe à la résonance une diminution du signal sur le détecteur : c'est la méthode dite de "flop-cut".

Une modification introduite par ZACHARIAS [42] consiste à utiliser

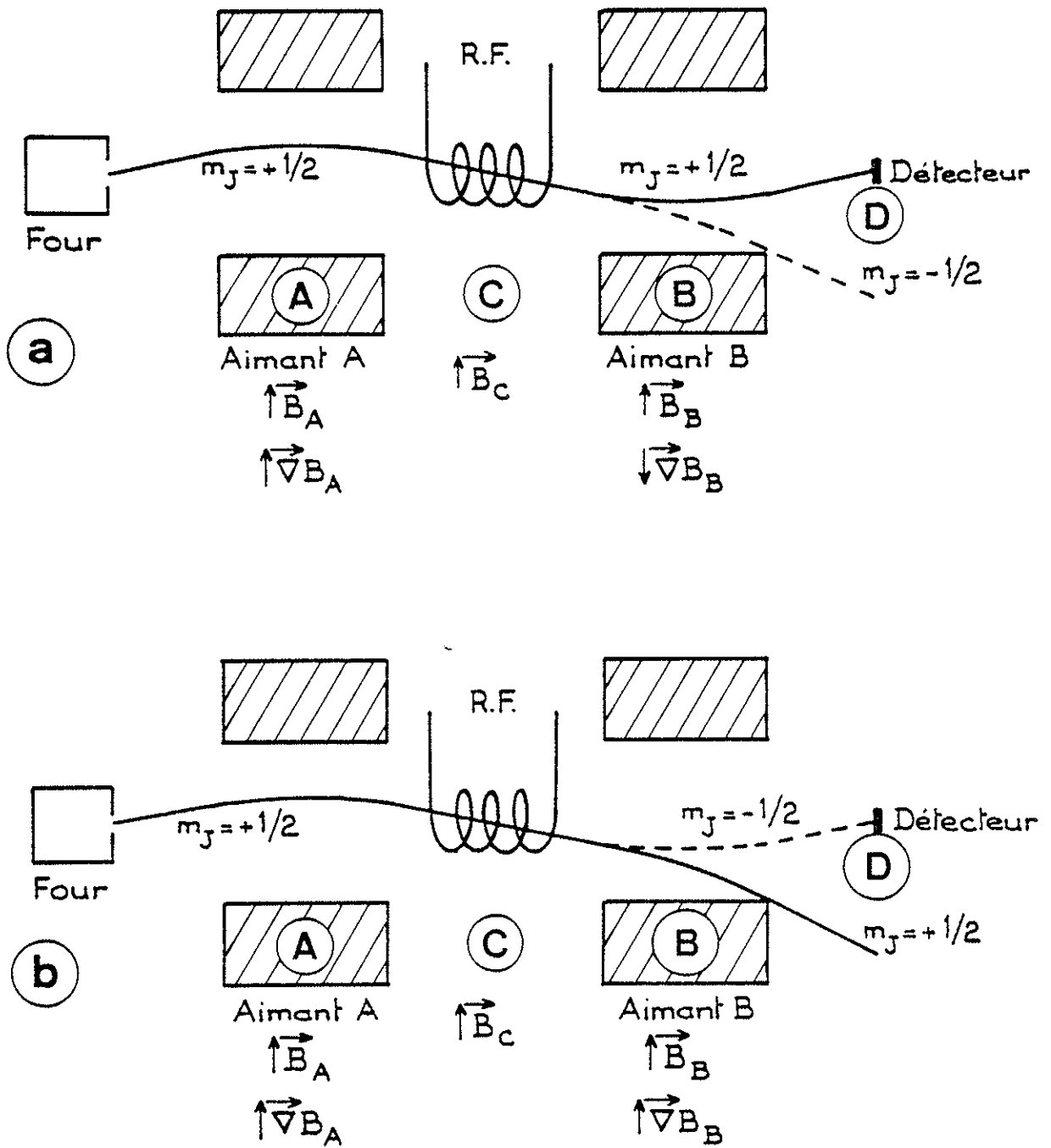


Figure III-5

a - Méthode de "flop-out"

b - Méthode de "flop-in".

des aimants A et B dont les gradients sont de même sens. Dans ces conditions seuls les atomes qui ont subi un changement d'état magnétique (changement de m_J) voient leurs trajectoires redressées et sont recueillis sur le détecteur. Cette méthode permet d'avoir un signal sur un fond noir ; elle est connue sous le nom de méthode de "flop-in".

B-2 - UTILISATION D'AIMANTS FOCALISANTS.

Dans le cas des jets peu denses on cherche à augmenter le nombre d'atomes collectés par le détecteur. Une méthode consiste à utiliser comme aimants A et B des aimants focalisants à la place d'aimants défecteurs.

Le premier appareil de ce type mis au point par LEMONICK, PIPKIN et HAMILTON [35] comprend deux aimants hexapolaires (voir figure III-6). Les aimants A et B sont tous deux focalisants pour les états $m_J = +\frac{1}{2}$. Une détection de type "flop-out" utilisant un détecteur axial tirerait donc profit des propriétés focalisatrices des aimants A et B (figure III-6a). Si, par contre, on désire mettre en oeuvre une détection de type "flop-in" de façon à éliminer le fond, il faut détecter les atomes qui initialement dans des états $m_J = +\frac{1}{2}$ sont focalisés par l'aimant A puis subissent un changement d'état magnétique dans la région C et sont défocalisés ($m_J = -\frac{1}{2}$) pour l'aimant B.

Un écran axial permet d'éliminer les atomes qui ont gardé la valeur $m_J = +\frac{1}{2}$ et la forme des pièces polaires de l'aimant B est étudiée pour laisser passer les atomes défocalisés (figure III-6b). Le signal doit être reçu sur un grand détecteur de forme annulaire. On comprend dans ces conditions que les propriétés défocalisantes de l'aimant B pour les états $m_J = -\frac{1}{2}$ soient plutôt un inconvénient qu'un avantage et que l'utilisation d'aimants focalisateurs et d'une méthode de détection de type "flop-in" ne peuvent aller de pair. Pour cette raison les appareils qui ont été construits ultérieurement comprennent un aimant hexapolaire

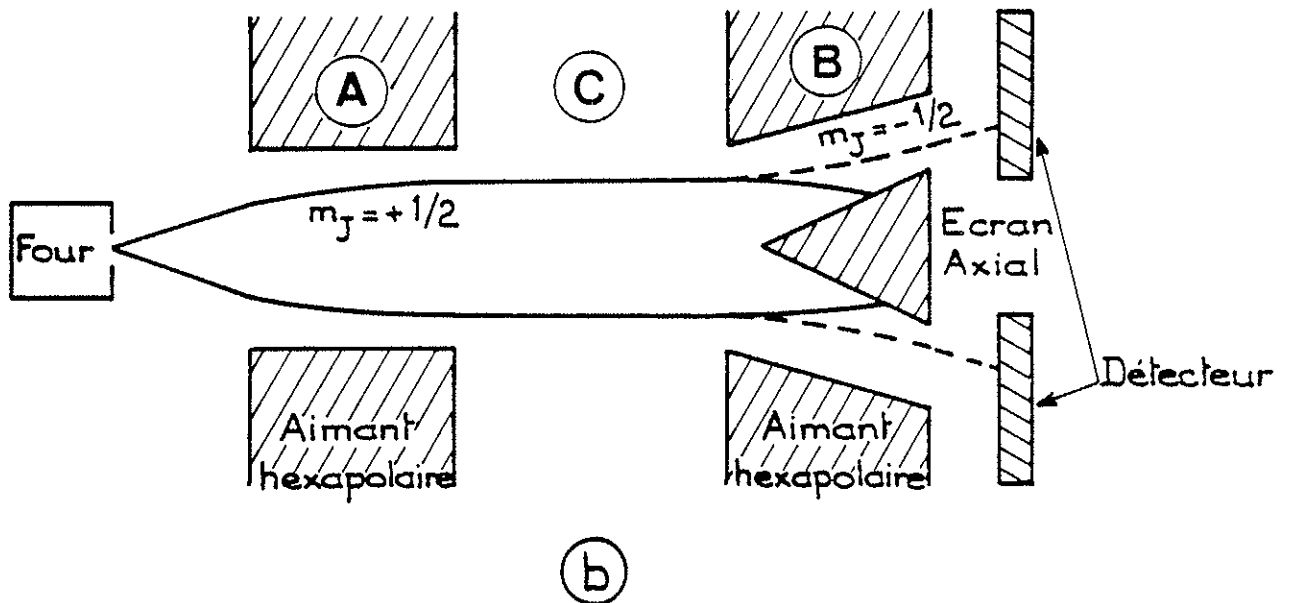
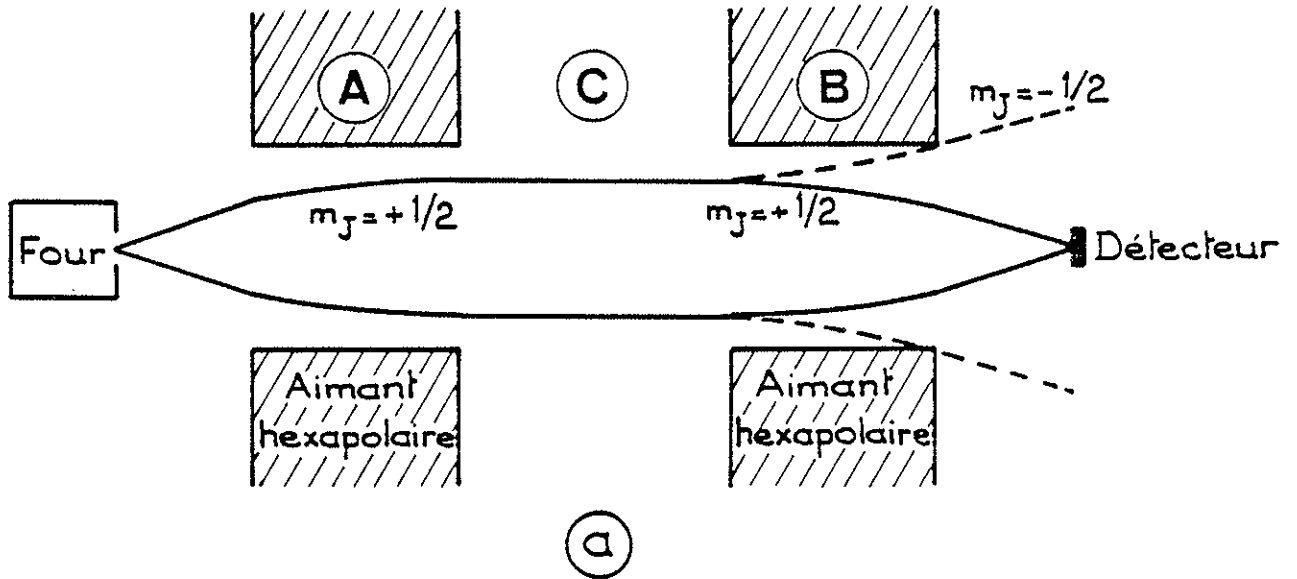


Figure III-6

a - Montage "flop-out"

b - Montage "flop-in".

comme aimant A pour conserver les avantages de la focalisation et comme aimant B soit un aimant quadrupolaire à symétrie cylindrique [36], soit un aimant dipolaire de type "quadrupolaire" [37] qui présentent des propriétés équivalentes comme on l'a vu au paragraphe III-A. En supprimant le caractère "défocalisant" de l'aimant B, on peut réduire la surface du détecteur.

B-3 - UTILISATION DE LUMIERE POLARISEE COMME SELECTEUR D'ETATS MAGNETIQUES.

Dans ce qui précède, les aimants A et B jouent respectivement le rôle d'un polariseur et d'un analyseur de l'état magnétique de l'atome. KASTLER [43] a proposé d'utiliser des faisceaux lumineux polarisés circulairement et de fréquence égale à la fréquence de résonance optique à la place des aimants A et B. Au lieu de la séparation spatiale, c'est le pompage optique qui produit la différence de population entre les états magnétiques du fondamental (région A) ; cette dissymétrie est analysée dans la région B en observant la fluorescence des atomes soumis à un rayonnement résonnant convenablement polarisé. Toute modification de cette dissymétrie dans la région intermédiaire (région C) pourra donc être détectée dans la région B.

L'expérience est encore plus aisée si l'on utilise un rayonnement laser monochromatique. Dans ce cas, si la largeur spectrale du laser est très inférieure à la structure hyperfine du fondamental, on peut tirer avantage du pompage hyperfin pour "polariser" le jet atomique [44],[45].

D'autre part, BUCKA [46] et ZIMMERMAN [47] ont proposé et appliqué au cas du ^{39}K une méthode intermédiaire entre celle de RABI et celle proposée par KASTLER, puisqu'ils ont utilisé le pompage optique par un faisceau lumineux résonnant polarisé circulairement pour "polariser" le faisceau atomique et un aimant inhomogène dipolaire pour analyser cette polarisation magnétique.

B-4 - UTILISATION D'UN FAISCEAU LASER POUR "POLARISER" LE JET
ATOMIQUE ET D'UN AIMANT INHOMOGENE COMME ANALYSEUR.

Considérons l'expérience représentée sur la figure III-7. Le rayonnement laser est accordé et fixé sur une composante hyperfine de la transition de résonance partant du sous-niveau $F = I + \frac{1}{2}$. Le pompage hyperfin permet de transférer tous les atomes dans l'état $F = I - \frac{1}{2}$ dont tous les sous-niveaux m_F correspondent à des états $m_J = -\frac{1}{2}$ (cas d'un moment magnétique positif). Ces atomes sont donc tous défocalisés par l'aimant hexapolaire B et le signal reçu sur le détecteur est nul. Si, par contre, on change l'état magnétique des atomes dans la région intermédiaire C, par exemple en appliquant un champ de radiofréquence, on peut repeupler des états correspondant à $m_J = +\frac{1}{2}$ et obtenir un accroissement du signal sur le détecteur. Cet appareil permet donc une détection de type "flop-in" tout en utilisant au mieux un aimant focalisateur comme aimant B pour augmenter l'angle solide utile.

La région A est réduite à une région de longueur inférieure ou égale au centimètre (section droite du faisceau laser au niveau du jet). La distance Four - Aimant B peut donc être beaucoup plus faible que dans les machines classiques utilisant deux aimants inhomogènes. De plus, les propriétés de focalisation de l'aimant B augmentent encore l'angle solide utilisable d'où un gain en amplitude de signal sur le détecteur.

C'est le dispositif représenté sur la figure III-7 qui a été utilisé dans l'expérience sur les atomes radioactifs de sodium pour la mesure des spins. Le même dispositif aurait pu être utilisé pour mesurer la structure hyperfine de l'état fondamental, par résonance magnétique, en induisant dans la région C les transitions de radiofréquence $\Delta F = \pm 1$ entre sous-niveaux de l'état fondamental. Ceci aurait nécessité l'emploi de radiofréquences de quelques GHz et nous avons préféré faire une mesure purement optique comme cela a été indiqué au

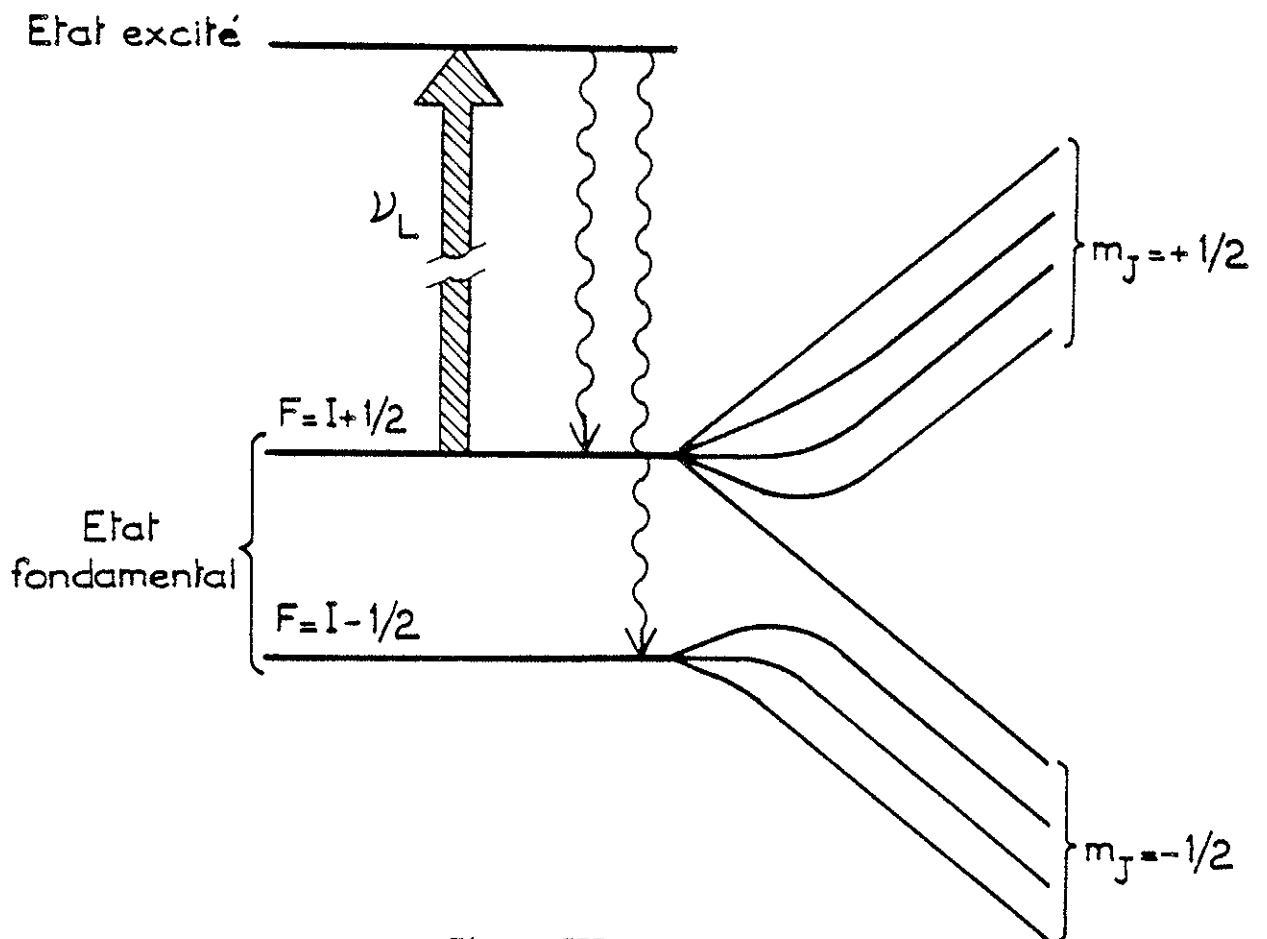
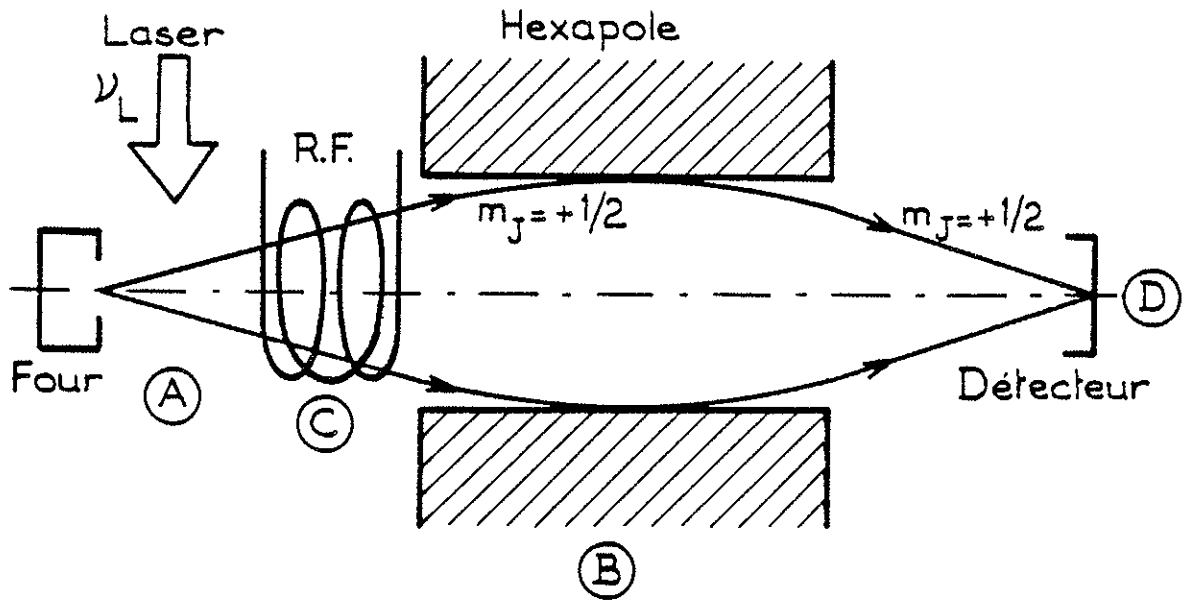


Figure III-7

paragraphe I,D . Cette méthode a l'avantage de permettre la détermination simultanée du déplacement isotopique et des structures hyperfines de l'état excité et de l'état fondamental. Elle a l'inconvénient, par contre, de donner lieu à des signaux soit positifs, soit négatifs, sur fond non nul, d'où perte de l'avantage de la méthode "flop-in" qui permet d'avoir des signaux sur fond noir.

C - TRANSMISSION de l'AIMANT HEXAPOLAIRE ; ANGLE SOLIDE UTILE.

C-1 - INTRODUCTION.

Le calcul complet des trajectoires des atomes dans un aimant hexapolaire a été effectué par HUGHES [48]. Il a aussi étudié les propriétés de sélection d'états magnétiques d'un tel aimant.

Nous avons adapté ce calcul à notre cas particulier et seules les grandes lignes seront exposées dans ce paragraphe, tous les détails du calcul se trouvant dans la référence [48]. Il faut d'abord rappeler que ce calcul n'est valable qu'à deux approximations près :

- Le champ magnétique correspond exactement au champ d'un aimant hexapolaire parfait calculé au paragraphe III-A.
- Le moment magnétique de l'atome est soit $+\mu_0$, soit $-\mu_0$ (approximation de champ fort).

Cette dernière approximation n'est jamais valable sur l'axe de symétrie ; on supposera toutefois que la région autour de l'axe où elle n'est pas valable est très peu étendue.

C-2 - TRAJECTOIRES DES ATOMES ET ANGLE SOLIDE UTILI.

Les trajectoires des atomes et, par conséquent, les propriétés de sélection d'états magnétiques de l'aimant dépendent de la vitesse des atomes ; il faut donc tenir compte de la distribution des vitesses dans le jet. Les notations utilisées dans le calcul sont les suivantes (voir figure III-8a) :

- T : température de la source (four).
- m : masse d'un atome considéré.
- v : vitesse de l'atome considéré.
- R : rayon de l'entrefer de l'aimant hexapolaire.
- L : longueur de l'aimant hexapolaire.
- B_R : champ maximum sur les pièces polaires.
- P_S : point source (sortie du four) situé sur l'axe de symétrie.
- A : distance de la sortie du four à l'entrée de l'aimant hexapolaire.

Par ailleurs, pour simplifier l'écriture des calculs, on pose :

$$\eta = \frac{1}{v} \sqrt{4kT/m} \quad , \quad K = \left(\frac{\mu_0 B_R}{2kT} \right)^{\frac{1}{2}} \quad , \quad C_1 = \frac{KA}{R} \quad , \quad C_2 = \frac{KL}{R}$$

$\frac{1}{\eta}$ est une vitesse réduite,

K^2 est une énergie magnétique réduite.

On s'intéresse aux atomes émis par le point P_S de l'orifice du four situé sur l'axe de symétrie (voir figure III-8a). La loi de force étant connue (voir III-A) on peut, pour chaque valeur de η , calculer la trajectoire d'un atome $m_J = +\frac{1}{2}$ (trajectoire sinusoïdale) et d'un atome $m_J = -\frac{1}{2}$ (trajectoire hyperbolique) dans l'entrefer. On peut également trouver les trajectoires extrémales qui traversent l'hexapole et calculer la coordonnée transverse maximale $x_{Omax}^{\pm}(\eta)$ permettant le passage de l'atome $m_J = \pm\frac{1}{2}$ à travers l'hexapole. On peut en déduire, pour chaque valeur de η les angles solides :

$$\Omega^{\pm}(\eta) = \pi \left(\frac{x_{Omax}^{\pm}(\eta)}{A} \right)^2 \quad (\text{voir figure III-8 b et c}).$$

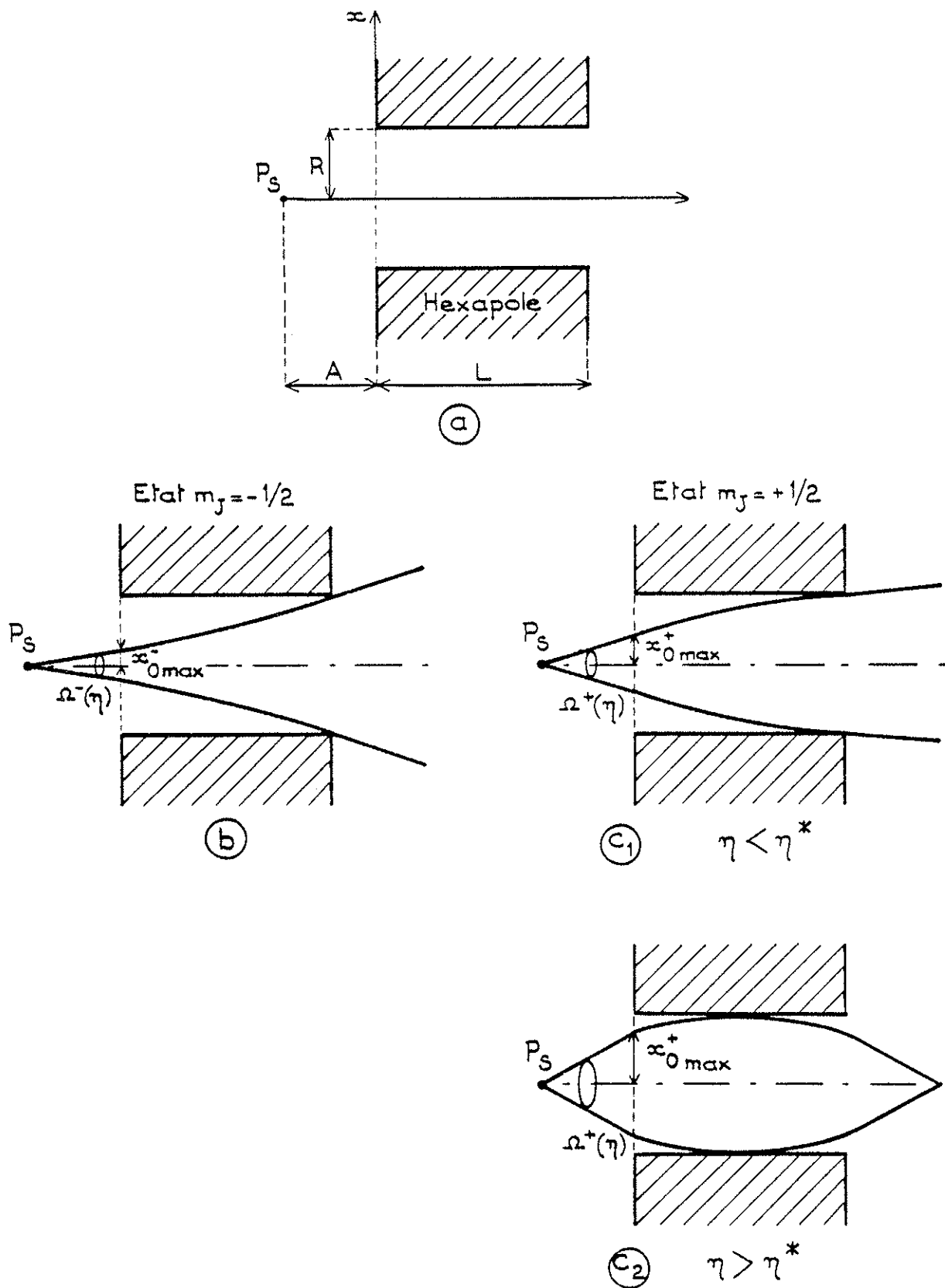


Figure III-8

Trajectoire des atomes dans l'entrefer de l'aimant hexapolaire

a - notations.

b et c - définition des angles solides $\Omega^-(\eta)$ et $\Omega^+(\eta)$.

Les résultats sont les suivants :

- Pour les atomes correspondant à $m_J = -\frac{1}{2}$ (figure III-8b) l'angle solide $\Omega^-(\eta)$ s'exprime en fonction des paramètres définis plus haut :

$$\Omega^-(\eta) = \frac{\pi(nK)^2}{[\text{Sin } h(\eta C_2) + \eta C_1 \text{ Cos } h(\eta C_2)]^2} \quad (1)$$

- Pour les atomes correspondant à $m_J = +\frac{1}{2}$ deux cas sont à envisager suivant la valeur de η considérée.

Soit η^* la valeur de η pour laquelle les atomes sortent de l'hexapole tangentiellement aux pièces polaires (parallèlement à l'axe de symétrie). On trouve que η^* doit satisfaire l'équation

$$\text{Cotg } (\eta^* C_2) = \eta^* C_1 \quad (2)$$

1er cas : $\eta < \eta^*$ (cas des atomes rapides, fig. III-8c₁).

Le faisceau atomique diverge encore après l'hexapole et c'est le diamètre de sortie de l'entrefer qui limite l'angle solide, $\Omega^+(\eta)$ se met sous la forme :

$$\Omega^+(\eta) = \frac{\pi(nK)^2}{[\text{Sin } (\eta C_2) + \eta C_1 \text{ Cos } (\eta C_2)]^2} \quad (3)$$

2ème cas : $\eta > \eta^*$ (cas des atomes lents, fig. III-8c₂).

Le faisceau atomique converge après l'hexapole et les trajectoires extrémales tangentent les pièces polaires à l'intérieur de l'aimant, $\Omega^+(\eta)$ se met sous la forme :

$$\Omega^+(\eta) = \frac{\pi(nK)^2}{[1 + (\eta C_1)^2]} \quad (4)$$

Pour calculer l'intensité du jet transmis par l'hexapole, donc reçu par le détecteur, il faut utiliser comme fonction de distribution des vitesses $F_J(\eta)$ la fonction de distribution des vitesses dans un jet thermique, car on s'intéresse au flux d'atomes par unité de temps reçu

par le détecteur (cette fonction $F_J(\eta)$ est celle notée $F_{\text{Beam}}(\eta)$ dans la référence [48])

$$F_J(\eta) = 8\eta^{-5} \exp\left(-\frac{2}{\eta}\right) .$$

A partir des équations (1), (3), (4) et (5) on peut calculer les angles solides effectifs moyennés sur les vitesses

$$\Omega_{\text{eff}}^+ = \int_0^{\infty} F_J(\eta) \Omega^+(\eta) d\eta \quad (6)$$

et $\Omega_{\text{eff}}^- = \int_0^{\infty} F_J(\eta) \Omega^-(\eta) d\eta \quad (7)$

pour un jet dans lequel les atomes sont en nombre égal dans des états $m_J = +\frac{1}{2}$ et $m_J = -\frac{1}{2}$ (cas d'un jet thermique sans pompage hyperfin). On peut définir un angle solide effectif :

$$\Omega_{\text{eff}} = \frac{1}{2} (\Omega_{\text{eff}}^+ + \Omega_{\text{eff}}^-) = \int_0^{\infty} F_J(\eta) \frac{1}{2} [\Omega^+(\eta) + \Omega^-(\eta)] d\eta \quad (8)$$

Si l'on suppose que N_0 atomes sortent du four ($\frac{N_0}{2}$ dans l'état $m_J = +\frac{1}{2}$ et $\frac{N_0}{2}$ dans l'état $m_J = -\frac{1}{2}$) et que le diagramme spatial d'émission suit la loi de Lambert, le nombre d'atomes reçu par le détecteur est :

$$N_0 \frac{\Omega_{\text{eff}}}{\pi} = N_0 \frac{\Omega_{\text{eff}}^+ + \Omega_{\text{eff}}^-}{2\pi} .$$

Le fond (signal sur le détecteur en l'absence de pompage hyperfin) est

$$F = \frac{N_0 \Omega_{\text{eff}}}{\pi}$$

On appelle facteur de transmission τ de l'hexapole le rapport du nombre d'atomes qui passent à travers l'hexapole et arrivent sur le détecteur au nombre d'atomes qui sortent du four.

On a donc :

$$\tau = \frac{\Omega_{\text{eff}}}{\pi}$$

* (voir note)

Lorsque le pompage hyperfin est parfait, tous les atomes sont transférés dans les états $m_J = +\frac{1}{2}$ (cas des raies positives) ou dans les états $m_J = -\frac{1}{2}$ (cas des raies négatives). Le signal sur le détecteur est alors respectivement :

$$F^+ = N_0 \frac{\Omega_{\text{eff}}^+}{\pi} \quad \text{ou} \quad F^- = N_0 \frac{\Omega_{\text{eff}}^-}{\pi} \quad \text{et le "signal optique"}$$

défini comme $F^+ - F^-$ (respectivement $F^- - F^+$) est

$$S^\pm = \pm N_0 \frac{\Omega_{\text{eff}}^+ - \Omega_{\text{eff}}^-}{2\pi}$$

Le rapport signal sur fond sera donc

$$\rho = \left| \frac{S^\pm}{F} \right| = \frac{\Omega_{\text{eff}}^+ - \Omega_{\text{eff}}^-}{\Omega_{\text{eff}}^+ + \Omega_{\text{eff}}^-}$$

En fait, suivant la transition étudiée et la polarisation choisie pour la lumière, le pompage hyperfin ne permet pas toujours de ramener tous les atomes dans les états correspondant à un seul m_J et le rapport signal sur fond est alors inférieur à la valeur maximale calculée ici. Ce point sera abordé dans la partie IV.

* Ce facteur de transmission ainsi défini n'est pas l'analogie du facteur de transmission défini en optique. Nous avons cependant employé le terme de facteur de transmission car il est couramment utilisé dans la littérature avec cette définition.

C-3 - APPLICATIONS NUMERIQUES.

Nous avons pris le cas particulier d'atomes de ^{23}Na , émis par un four à la température $T = 2000^\circ\text{K}$.

Les autres paramètres sont :

$$\left\{ \begin{array}{l} B_R = 9300 \text{ Gauss} \\ \frac{\mu_0}{h} = 1,4 \text{ MHz/Gauss} \\ R = 0,16 \text{ cm rayon de l'entrefer de l'hexapole} \\ L = 17 \text{ cm longueur de l'hexapole.} \end{array} \right.$$

Avec ces valeurs numériques on trouve :

$$K = 0,0125 \quad \text{et} \quad C_2 = 1,33 .$$

Un programme a été écrit pour calculer

$$\Omega_{\text{eff}}^+, \quad \Omega_{\text{eff}}^- \quad \text{et} \quad \rho = \frac{\Omega_{\text{eff}}^+ - \Omega_{\text{eff}}^-}{\Omega_{\text{eff}}^+ + \Omega_{\text{eff}}^-}$$

pour diverses valeurs de A donc de C_1 . On trouve que Ω_{eff}^+ et Ω_{eff}^- augmentent lorsque A diminue, tandis que ρ passe par une valeur maximale pour une valeur de A voisine de 8 cm (figure III-9). Les variations de ρ sont cependant très faibles dans une région très importante autour de cette valeur de A .

Afin d'augmenter au maximum la transmission de notre appareil, il a paru utile de choisir A aussi petit que possible, pour augmenter Ω_{eff} . Pour des raisons d'encombrement géométrique il a fallu se limiter à $A = 6 \text{ cm}$, d'où $C_1 = 0,468$. Par ailleurs, un choix de A trop faible aurait également l'inconvénient d'augmenter la largeur Doppler des raies en augmentant Ω_{eff} .

Les résultats numériques du calcul sont les suivants :

$$\Omega_{\text{eff}}^+ = 5,24 \times 10^{-4} \text{ srd}$$

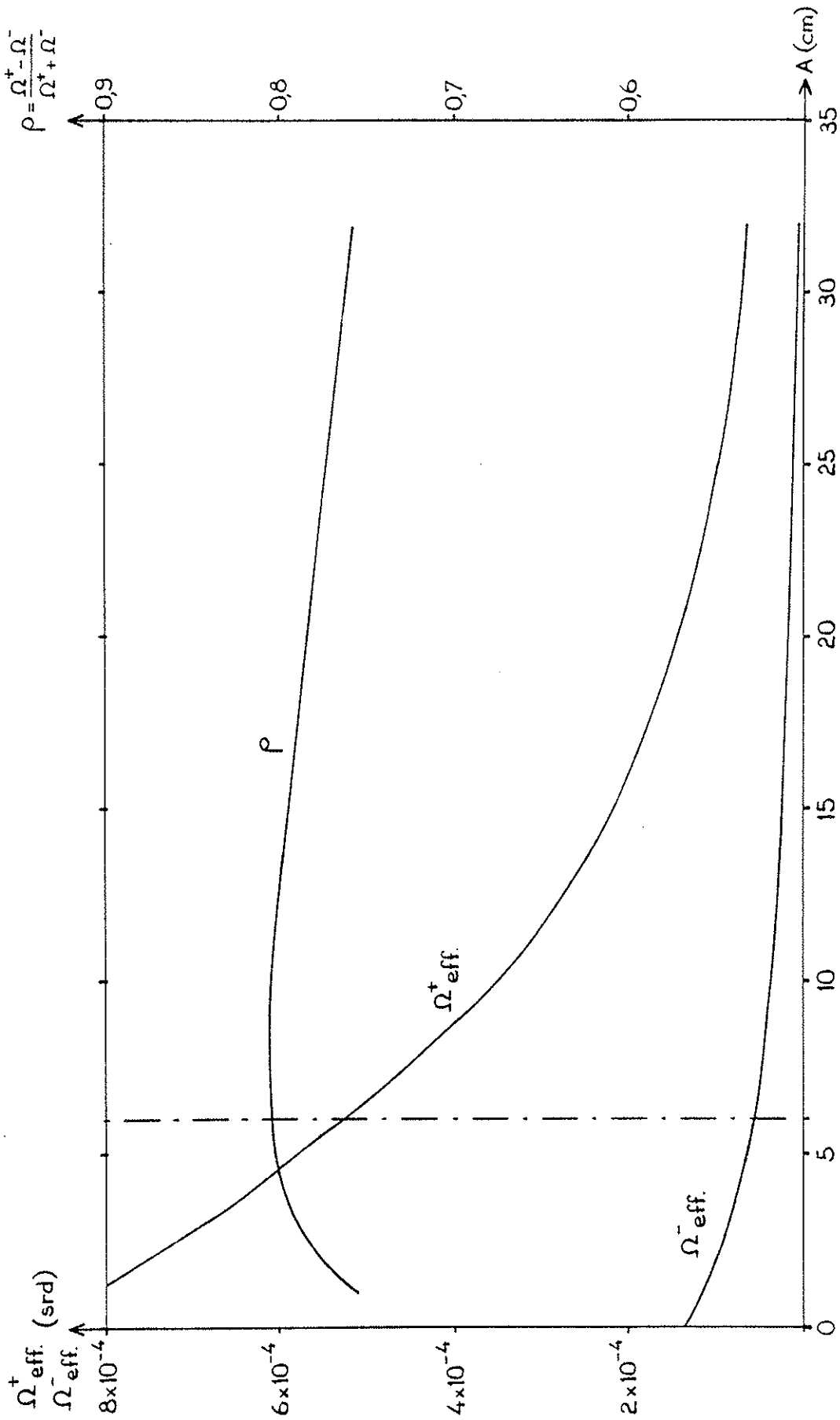


Figure III-9

Ω_{eff}^+ , Ω_{eff}^- et ρ en fonction du paramètre A (distance de la source à l'entrée de l'hexapole).

$$\Omega_{\text{eff}}^- = 5,66 \times 10^{-5} \text{ srd}$$

$$\rho = \frac{\Omega_{\text{eff}}^+ - \Omega_{\text{eff}}^-}{\Omega_{\text{eff}}^+ + \Omega_{\text{eff}}^-} = \frac{S}{F} = 0,805$$

$$\frac{S}{F} \approx 0,8$$

Le facteur de transmission est :

$$\tau = \frac{\Omega_{\text{eff}}}{\pi} = \frac{\Omega_{\text{eff}}^+ + \Omega_{\text{eff}}^-}{2\pi} = 9,2 \times 10^{-5} \approx 10^{-4}$$

$$\tau \approx 10^{-4}$$

et

$$\Omega_{\text{eff}} = 2,9 \times 10^{-4} \text{ srd}$$

Si l'on appelle Ω_0 l'angle solide sous lequel on voit la sortie de l'entrefer de l'hexapole depuis la source S on trouve :

$$\Omega_0 = \frac{\pi \times 0,16^2}{23^2} = 1,52 \times 10^{-4} \text{ srd} .$$

Ω_{eff} est à peu près deux fois plus grand que Ω_0 , ceci est une conséquence des propriétés focalisatrices de l'hexapole.

D - COMPARAISON de la TRANSMISSION de notre APPAREIL avec des APPAREILS "de TYPE RABI" COMPRENANT DEUX AIMANTS.

Pour N_0 atomes qui sortent du four, le dispositif que nous avons utilisé fournit un fond de $F = 9,2 \times 10^{-5} N_0$ atomes et un "signal" $S = 0,8 F = 7,4 \times 10^{-5} N$ (cf. §. précédent).

D-1 - COMPARAISON AVEC UN APPAREIL UTILISANT DEUX AIMANTS DEFLECTEURS.

Un appareil de ce type a été utilisé pour faire des expériences sur les raies D_1 du sodium (voir Annexe III) [49] ; nos résultats numériques sont donc aisément comparables aux résultats de la référence [49] . Le système utilisant deux aimants dipolaires donne $S_1 = 0,40 \times 10^{-6} N_0$ et $\frac{S_1}{F_1} = 10$. La méthode utilisant un seul aimant hexapolaire a donc le désavantage de ne pas travailler sur fond nul ($\frac{S}{F} = 0,8$ au lieu de $\frac{S_1}{F_1} = 10$), mais elle fournit un signal beaucoup plus grand ($\frac{S}{S_1} \approx 185$) pour des aimants de taille comparable.

D-2 - COMPARAISON AVEC LES APPAREILS UTILISANT DES AIMANTS FOCALISATEURS.

Les expériences pour lesquelles ces appareils ont été utilisés sont des expériences de résonance magnétique alors que la nôtre est une expérience optique. On peut cependant comparer les angles solides effectifs et les facteurs de transmission de ces différents appareils (propriétés essentiellement géométriques des appareils). Cette comparaison est toutefois plus délicate que dans le paragraphe précédent .

En théorie c'est l'aimant A - qui est dans tous les cas un aimant hexapolaire - qui détermine l'angle solide effectif, l'entrefer de l'aimant B étant calculé pour ne pas diaphragmer le faisceau.

BERNSTEIN, HABERSTROH, HAMILTON, POSNER et SNIDER [37], qui ont utilisé un appareil comprenant un aimant A hexapolaire et un aimant B dipolaire de type "quadrupolaire" ont calculé un $\bar{\Omega}$ moyenné sur les vitesses de 1×10^{-4} srd à comparer avec notre valeur de $2,33 \times 10^{-4}$ srd pour $\frac{1}{2}(\Omega_{\text{eff}}^+ + \Omega_{\text{eff}}^-)$, soit un signal plus de deux fois plus faible dans leur cas, mais avec un rapport $\frac{S}{F}$ voisin de 10 (au lieu de 0,8 dans notre cas).

EKSTRÖM, OLSMATS, WANNBERG et LINDGREN [36], qui ont utilisé un appareil composé d'un aimant A hexapolaire et d'un aimant B quadrupolaire, ont calculé tous les paramètres de leur appareil pour obtenir la meilleure transmission possible. Ils obtiennent, pour le cas qui nous intéresse (atomes de sodium à 2000°K et transition $m_J = +\frac{1}{2} \rightarrow m_J = -\frac{1}{2}$ dans la région C) un angle solide légèrement supérieur à 2×10^{-4} srd, donc comparable à notre valeur de $2,33 \times 10^{-4}$ srd.

Il faut noter que cet angle solide important n'est obtenu qu'à la condition d'utiliser des aimants A et B d'entrefers importants (Aimant A : rayon d'entrée 3,4 mm, rayon de sortie 7,0 mm. Aimant B : rayon d'entrée 5,6 mm, rayon de sortie 9,2 mm). La comparaison des deux angles solides n'est donc pas totalement significative. Il semblerait cependant que le gain en transmission de notre méthode par rapport à un appareil de type Rabi utilisant un aimant focalisateur soit assez faible (facteur 2 ou 3). Notre méthode nous fait perdre l'avantage - important dans le cas des jets peu intenses - de la détection sur fond noir ($\frac{S}{F} \gg 1$) que l'on a dans la méthode de type "flop in" avec deux aimants. On peut par conséquent se demander si l'on a intérêt, dans le cas des jets faibles, à utiliser notre méthode ou une méthode de type Rabi avec aimant A hexapolaire.

En fait on ne s'est intéressé pour le moment qu'aux atomes issus d'un point source situé sur l'axe de symétrie ; or, l'orifice de sortie du four, dans le cas présent, est un tube de 3 mm de diamètre, donc de dimension comparable à l'entrefer de l'aimant hexapolaire. Avec un tel orifice de sortie ($\sim 7 \text{ mm}^2$ de section) c'est le temps de diffusion des atomes dans le graphite de la cible qui détermine le temps que ces atomes mettent pour sortie du four (environ 150 ms, voir §.III-E). Mais si l'on réduit la surface du trou de sortie d'un facteur 10 ou plus, on rajoute une constante de temps supplémentaire qui devient non négligeable et les atomes mettent plus de temps pour sortie du four. Ceci est particulièrement gênant pour les isotopes de masse supérieure ou égale à 28 qui sont très instables ($T < 57 \text{ ms}$, voir §.II-B). On est donc obligé de travailler avec une "source étendue".

Une analogie optique a déjà été utilisée dans la littérature [50]; un aimant hexapolaire se comporte comme une lentille convergente pour les états $m_J = +\frac{1}{2}$ et comme une lentille divergente pour les états $m_J = -\frac{1}{2}$. Cette analogie est utilisée dans la figure III-10 pour illustrer le fait que, pour les points sources éloignés de l'axe de symétrie, l'angle solide utile est beaucoup plus faible pour un système à deux "lentilles" que pour un système à une "lentille". Entre notre appareil et un appareil de type Rabi avec aimant A hexapolaire, ce sont les angles solides utiles calculés pour le point source S_0 sur l'axe qui ne diffèrent que dans un rapport 2,3 ; par contre, pour les points sources hors axe, la différence est probablement beaucoup plus grande. D'ailleurs les utilisateurs d'appareils de type Rabi avec aimants focalisateurs utilisent des trous sources de diamètre petit par rapport au diamètre de l'entrefer de l'aimant hexapolaire [56],[37] (typiquement $d_{\text{source}} = 0,5 \text{ mm}$ pour un diamètre de 3,2 mm pour l'entrefer).

L'utilisation d'une source "étendue" sur un appareil de type Rabi aurait comme inconvénient supplémentaire d'augmenter le fond F , car les obstacles qui permettent de travailler sur "fond noir" sont prévus pour fonctionner avec une source ponctuelle sur l'axe de symétrie. Le

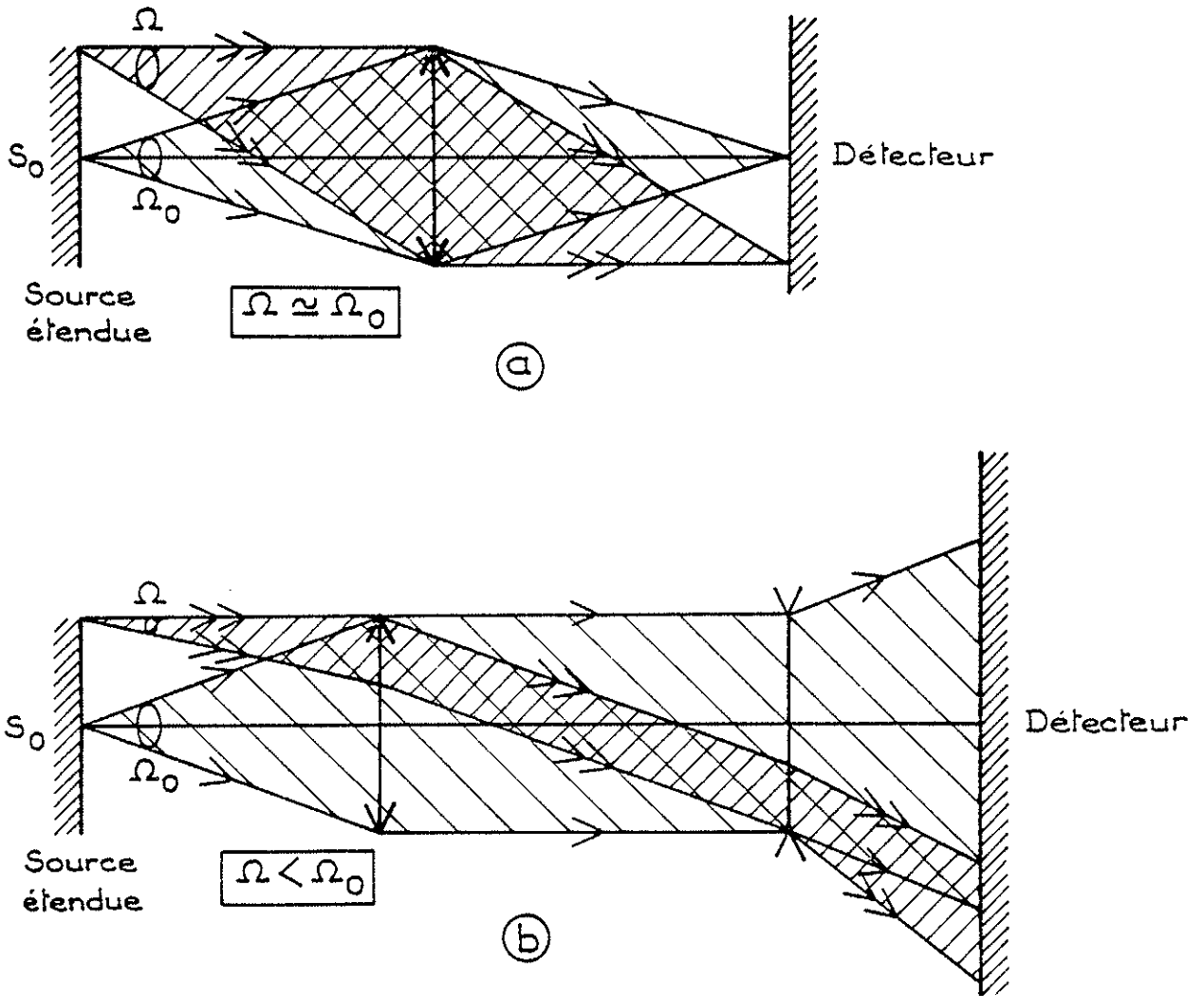


Figure III-10

- a - Système à une lentille
- b - Système à deux lentilles

fait que nous soyons obligés de travailler avec une source "étendue" doit donc nous faire préférer la méthode utilisant un seul aimant hexapolaire à celle utilisant un appareil à deux aimants A et B avec un aimant A hexapolaire.

E - CALCUL du RENDEMENT GLOBAL de la METHODE et de l'EFFET DOPPLER RESIDUEL du JET ATOMIQUE.

E-1 - CALCUL DU RENDEMENT GLOBAL DE LA METHODE.

Pour l'isotope ^{25}Na , le nombre d'ions observés sur le détecteur en bout d'appareil est typiquement $N_1 = 5000$ coups/pulse de protons pour la pleine puissance du faisceau de protons. Le nombre d'atomes de ^{25}Na produits dans la cible peut être estimé à $N_0 = 5,3 \times 10^8$ atomes par pulse de protons (voir §.II-B). Le rendement global mesuré de la méthode est donc

$$T_{\text{total}} = \frac{N_1}{N_0} \approx 10^{-5}$$

Ce rendement global peut être calculé de la façon suivante :

- On peut estimer à 60% environ le pourcentage des atomes produits qui sont implantés dans le graphite, d'où un rendement de la cible :

$$\rho_{\text{cible}} = 0,6$$

[51] .

- On ne compte les atomes que pendant 200 ms au maximum ; or la diffusion des atomes à travers le graphite se fait avec une constante de temps

τ_{diff} peut être mesurée sur la figure III-11 (courbe de diffusion de ^{26}Na). On trouve :

$$\tau_{\text{diff}} = \frac{100}{\text{Log}2} \text{ ms}$$

Par conséquent, en 200 ms on ne collecte que les $3/4$ des atomes qui sortent du four après chaque pulse de protons

$$\rho_{\text{diff}} = 0,75$$

- On doit ensuite faire intervenir la transmission de l'hexapole calculée précédemment :

$$\tau_{\text{hexapole}} \approx 10^{-4}$$

- On suppose de l'ionisation dans le tube de rhénium à un rendement de 100% .

- Le système de mesure (spectromètre de masse + ligne de transport) a une transmission mesurée d'environ 60% .

$$\tau_{\text{spectro}} = 0,6$$

Le rendement global de la méthode est donc :

$$T_{\text{total}}^{\text{théor.}} = 0,6 \times 0,75 \times \tau_{\text{hexapole}} \times 0,6 \approx 2,5 \times 10^{-5}$$

à comparer avec la valeur expérimentale $T_{\text{total}} = 10^{-5}$ donnée plus haut.

Le facteur 2,5 de différence est à attribuer en partie au fait que l'on a négligé certaines pertes (le rendement de l'ionisation, par exemple, n'est pas de 100%). De plus, le facteur de transmission de

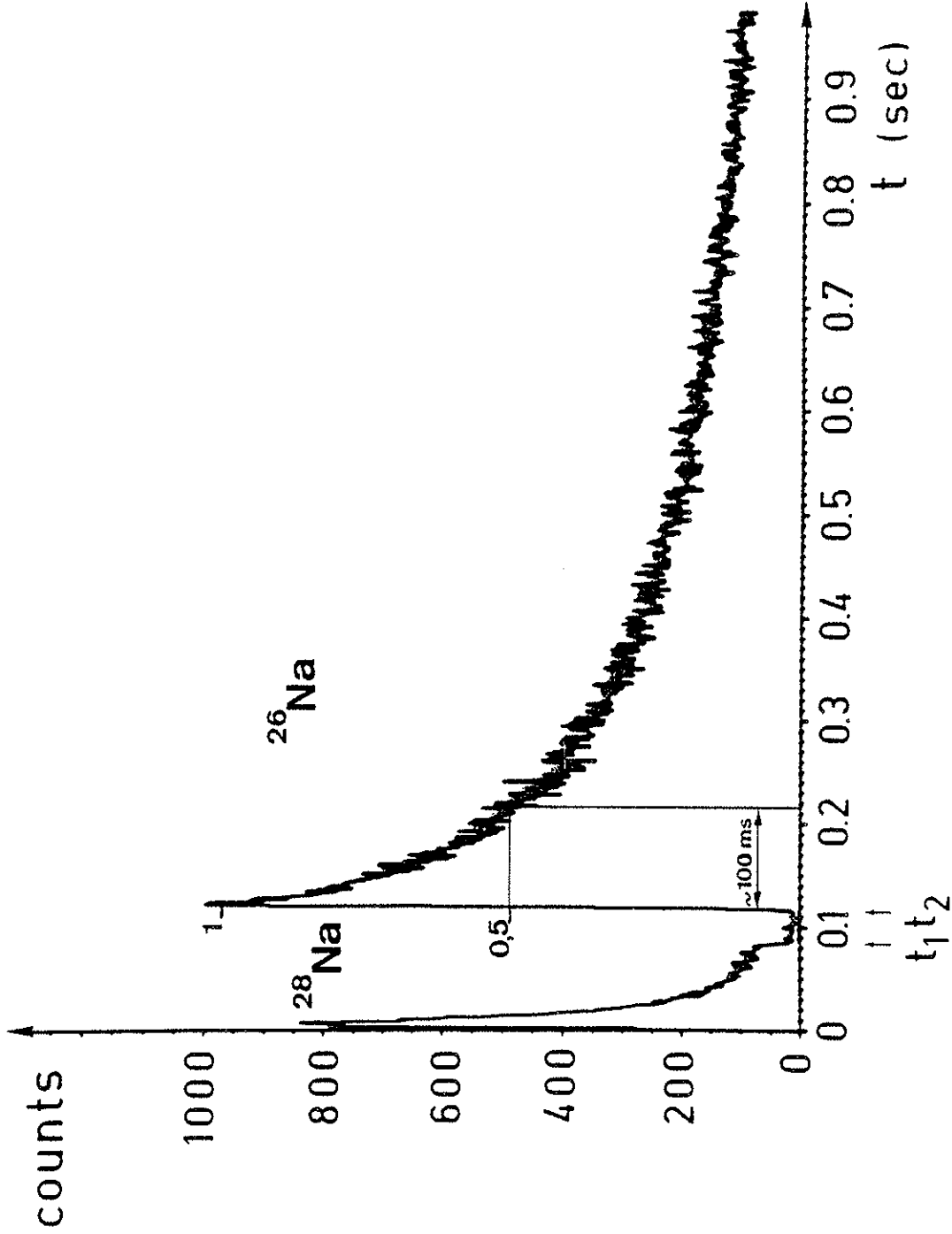


Figure III-11

Courbes de diffusion de ^{28}Na et de ^{26}Na .
La décroissance très rapide de ^{28}Na est due à
sa faible durée de vie (34 ms).

l'hexapole, τ_{hexapole} , a été calculé pour un point source situé sur l'axe, il est probablement plus faible pour une source étendue (cas réel). Par ailleurs, ce facteur de transmission mesure la proportion d'atomes émis par la source qui traverse l'hexapole. Pour être plus exact il faudrait calculer la proportion d'atomes émis par la source qui arrivent sur le tube ioniseur (voir §.II). Pour ces deux raisons le facteur de transmission réel de l'hexapole est probablement un peu plus faible que la quantité calculée (au pire, un facteur 2 plus faible).

E-2 - CALCUL DU RENDEMENT GLOBAL DE LA METHODE DANS LE CAS D'UN ISOTOPE DE COURTE PERIODE.

Le rendement global étant défini comme le rapport du nombre d'ions détectés pendant le temps de mesure au nombre d'atomes produits dans la cible, il faut dans le cas des isotopes de courte période tenir compte de la durée de vie de l'isotope considéré. N_0 atomes de longue durée de vie, par suite d'un temps de diffusion dans le graphite, sortent du four suivant la loi

$$\frac{dN}{dt} = \frac{N_0}{\tau_{\text{diff}}} e^{-\frac{t}{\tau_{\text{diff}}}}$$

La quantité $\tau_{\text{diff}} = \frac{100}{\text{Log}2}$ ms \approx 144 ms est déterminée sur la courbe de diffusion du ^{26}Na de la figure III-11. Pour un isotope de durée de vie T_{rad} , si N_0 atomes sont produits à l'instant $t=0$, il sortira du four à l'instant t :

$$dN = \frac{N_0}{\tau_{\text{diff}}} e^{-\frac{t}{\tau_{\text{diff}}}} \times e^{-\frac{t \text{ Log}2}{T_{\text{rad}}}} \times dt$$

soit au total
$$N_1 = \int_0^\infty \frac{dN}{dt} dt = \frac{N_0}{\tau_{\text{diff}}} \int_0^\infty e^{-t\left(\frac{1}{\tau_{\text{diff}}} + \frac{\text{Log}2}{T_{\text{rad}}}\right)} dt$$

$$N_1 = N_0 \frac{1}{1 + \frac{\tau_{\text{diff}} \text{Log} 2}{T_{\text{rad}}}}$$

avec

$$\text{Log} 2 \tau_{\text{diff}} = 100 \text{ ms}$$

Par rapport au rendement global pour un isotope stable, le rendement global de la méthode pour un isotope instable de durée de vie courte est inférieur d'un facteur $1 + \frac{0.1}{T_{\text{rad}}}$ où T_{rad} est exprimé en secondes.

Dans le cas du sodium ^{31}Na , $T_{\text{rad}} = 17 \text{ ms}$ et la transmission de l'appareil qui est de 10^{-5} pour ^{25}Na n'est plus que

$$\frac{10^{-5}}{1 + \frac{100}{17}} \approx \frac{10^{-5}}{7} \approx 1,4 \times 10^{-6}$$

Le tableau I du §.II-B donne une production de 2×10^5 atomes de ^{31}Na par impulsion de protons. On peut donc s'attendre à avoir sur le détecteur : $2 \times 10^5 \times 1,4 \times 10^{-6} \approx 0,3$ ions par impulsion de protons pour l'isotope ^{31}Na .

C'est, à l'heure actuelle, le dernier isotope de la série que nous avons pu étudier.

E-3 - CALCUL DE L'EFFET DOPPLER RESIDUEL.

La largeur Doppler pour une vapeur de sodium à 2000°K est donnée

par la formule
$$\frac{\Delta v_{\text{Doppler}}}{v} = \frac{2}{c} \sqrt{2 \text{Log} 2 \frac{RT}{M}}$$

R : 8,32 Joules/degré

c : vitesse de la lumière

M : masse atomique (en kg)

ce qui donne : $\Delta v_{\text{Doppler}} \approx 3200 \text{ MHz}$.

Pour un jet il faut diviser la largeur Doppler obtenue pour une vapeur par la collimation C .

La collimation, pour un jet délimité par deux fentes f_A , f_B , de largeur l_a et l_b , distantes de L , est la quantité :

$$C = \frac{L}{\frac{1}{2}(l_a + l_b)} \quad (\text{voir figure III-12})$$

Dans le cas présent, il faut regarder la collimation pour les atomes dans les états $m_j = +\frac{1}{2}$. C'est l'hexapole qui, en limitant l'angle solide Ω_{eff}^+ , définit la collimation du jet ; il faut de plus tenir compte de l'étendue de la source. La collimation C a été définie comme indiqué sur la figure III-12 :

$$C = \frac{L}{\frac{1}{2}[\Phi_s + \Phi_e]}$$

Φ_s diamètre de la source = 3 mm,

Φ_e diamètre de l'entrefer de l'hexapole = 3,2 mm

L est définie sur la figure III-12 .

On connaît l'angle solide Ω_{eff}^+

$$\Omega_{\text{eff}}^+ = \frac{\pi \Phi_e^2}{4 L^2} = 5.24 \times 10^{-4} \text{ srd}$$

ce qui permet de calculer $C = \frac{\Phi_e}{\Phi_e + \Phi_s} \sqrt{\frac{\pi}{\Omega_{\text{eff}}^+}} \approx 40$ C ≈ 40 .

Une collimation de 40 conduit à un effet Doppler résiduel sur le jet

$$\Delta\nu_{\text{Doppler}} = \frac{3200}{40} \approx 80 \text{ MHz}$$
Δν_{Doppler} ≈ 80 MHz

La méthode que nous avons choisie nous permet de travailler sur un jet assez ouvert, ce qui est utile dans le cas des jets peu denses. En contrepartie l'effet Doppler résiduel reste important et c'est lui qui limite la résolution. Cet inconvénient n'est pas très grave pour les raies D_1 dont toutes les composantes hyperfines sont bien séparées. Par contre, la structure du niveau $^2P_{3/2}$ étant plus petite que celle du niveau $^2P_{1/2}$, les raies D_2 sont plus difficiles à étudier car certaines composantes ne sont pas résolues.

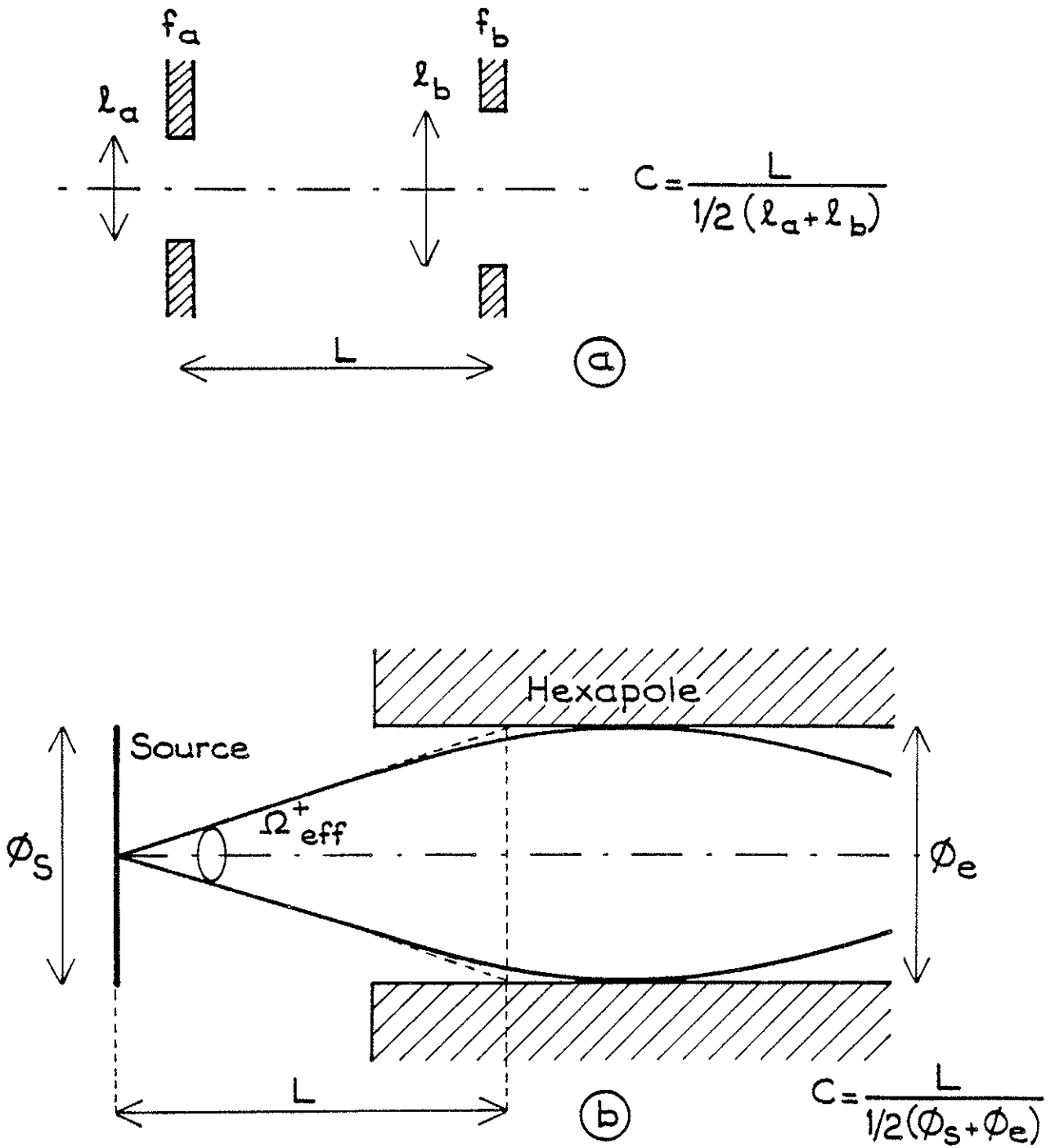


Figure III-12

Définition de la collimation

a - pour un jet délimité par deux fentes

b - dans l'expérience présente.

IV - LE POMPAGE OPTIQUE : CALCUL DE L'AMPLITUDE
ET DE LA LARGEUR EN FREQUENCE DES SIGNAUX.

A - POSITION du PROBLEME.

Dans ce qui précède nous avons supposé que lorsque la lumière était accordée sur une transition atomique, le pompage optique permettait de transférer tous les atomes dans des états correspondant à une seule valeur de m_J : c'est-à-dire que les transitions partant de $F = I + \frac{1}{2}$ (respectivement $I - \frac{1}{2}$) permettaient de transférer tous les atomes dans des états $m_J = -\frac{1}{2}$ (respectivement $m_J = +\frac{1}{2}$).

Dans ce cas idéal on a trouvé que le rapport signal sur fond était $\frac{S}{F} = 0,8$, dû au fait que l'hexapole n'est pas un sélecteur d'états magnétiques parfait. Nous allons maintenant essayer de calculer "l'efficacité" du pompage pour chaque composante hyperfine de la transition ; c'est-à-dire calculer le temps nécessaire, à puissance lumineuse donnée, pour que le pompage s'effectue, ainsi que la valeur limite que l'on peut atteindre pour le signal en tenant compte de ce que certains atomes ne peuvent pas être transférés dans des états de m_J donné. Dans un deuxième calcul, nous étudions la variation du signal atomique en fonction de la fréquence du rayonnement laser (largeur en fréquence des signaux de pompage) à puissance laser et temps d'interaction fixes.

Le problème posé fait intervenir trois niveaux : les deux niveaux hyperfins de l'état fondamental et le niveau hyperfin de l'état excité qui est peuplé par l'excitation laser. Pour étudier ce problème dans sa généralité il faut tenir compte d'un certain nombre de points :

- la dégénérescence Zeeman de chaque niveau hyperfin (il faut considérer séparément chaque sous-niveau Zeeman),
- les cohérences (cohérences Zeeman et cohérences optiques) entre ces sous-niveaux.

Ces deux premiers points conduisent à un système d'équations différentielles couplées comportant un grand nombre d'équations (surtout si I est élevé) :

- l'expérience se passe dans un jet et les atomes n'interagissent avec la lumière que pendant un temps fini ; il faut donc calculer la solution dépendant du temps du système d'équations différentielles (la solution stationnaire ne suffit pas) ;
- il faudrait également tenir compte de la dispersion des vitesses dans le jet, ce qui fait que le temps d'interaction n'est pas le même pour tous les atomes ainsi que de l'ouverture angulaire du jet atomique (effet Doppler résiduel).

Pour tous les calculs faits dans ce chapitre on ne tient pas compte de ce point et l'on considère un jet monocinétique et rigoureusement perpendiculaire au faisceau lumineux.

Nous n'avons pas cherché à obtenir la solution exacte du problème général et nous présentons ici successivement deux calculs correspondant à deux types d'approximation différents.

Dans le paragraphe suivant (§.IV-B), nous supposons la fréquence du laser fixée et accordée sur celle de la transition optique ; nous négligeons les cohérences et nous calculons l'amplitude du signal et la vitesse de pompage en tenant compte de tous les sous-niveaux Zeeman

à partir d'équations différentielles ne faisant intervenir que les populations.

Dans le second calcul (§.IV-C), on considère un système à trois niveaux non dégénérés pour lesquels on écrit les équations de Bloch optiques puis, au lieu de chercher la solution dépendante du temps de ces équations, on rajoute des termes sources et des termes de relaxation pour prendre en compte les atomes du jet qui rentrent et qui sortent de la zone d'interaction et on peut alors se limiter à la solution stationnaire de ces nouvelles équations. On calcule, pour ce modèle, la largeur en fréquence des signaux de pompage.

B - CALCUL de l'AMPLITUDE du SIGNAL et de la "VITESSE" de POMPAGE.

B-1 - HYPOTHESES SIMPLIFICATRICES.

a) On considère un jet atomique monocinétique. Tous les atomes ont la même vitesse \vec{v} en amplitude et direction.

b) La lumière laser se propage perpendiculairement au jet atomique et parallèlement à un champ magnétique B_0 . L'amplitude du champ est suffisamment faible pour que la structure Zeeman totale de la raie soit plus petite que la largeur naturelle de la raie (10 MHz).

c) En raison de la géométrie décrite ci-dessus (qui correspond au cas expérimental), une excitation π est impossible ; nous nous sommes limité aux deux autres polarisations pures σ^+ et σ^- pour pouvoir

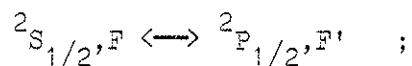
traiter le problème sans tenir compte des cohérences [52] . Le cas d'une excitation σ (polarisation rectiligne perpendiculaire à B_0) est plus compliqué et ne sera pas envisagé dans ce paragraphe.

d) La puissance laser par unité de surface est supposée suffisamment faible pour que l'on puisse négliger l'émission induite devant l'émission spontanée.

e) La fréquence laser est accordée sur la fréquence de la transition étudiée et les écarts de fréquence des composantes Zeeman sont négligés.

B-2 - NOTATIONS.

a) Le laser est accordé sur la transition



l'autre sous-niveau du fondamental est noté \bar{F} ; les sous-niveaux Zeeman m_F , $m_{\bar{F}}$, $m_{F'}$, sont notés respectivement m , \bar{m} , m' (voir figure IV-1).

b) $A_{m', m}$ et $A_{\bar{m}', \bar{m}}$ sont les probabilités d'émission spontanée par seconde d'un photon par désexcitation radiative d'un atome de l'état excité $|F', m'\rangle$ vers l'état fondamental $|F, m\rangle$, respectivement $|\bar{F}, \bar{m}\rangle$.

c) On utilisera les quantités :

$$E_{m', m} = \frac{A_{m', m}}{\sum_m A_{m', m} + \sum_{\bar{m}} A_{m', \bar{m}}} \quad \text{et} \quad E_{\bar{m}', \bar{m}} = \frac{A_{\bar{m}', \bar{m}}}{\sum_m A_{m', m} + \sum_{\bar{m}} A_{m', \bar{m}}}$$

qui représentent la proportion des atomes excités dans l'état $|F', m'\rangle$ qui retombent dans l'état $|F, m\rangle$, respectivement $|\bar{F}, \bar{m}\rangle$

$$(\text{ on a } \sum_m E_{m', m} + \sum_{\bar{m}} E_{\bar{m}', \bar{m}} = 1) .$$

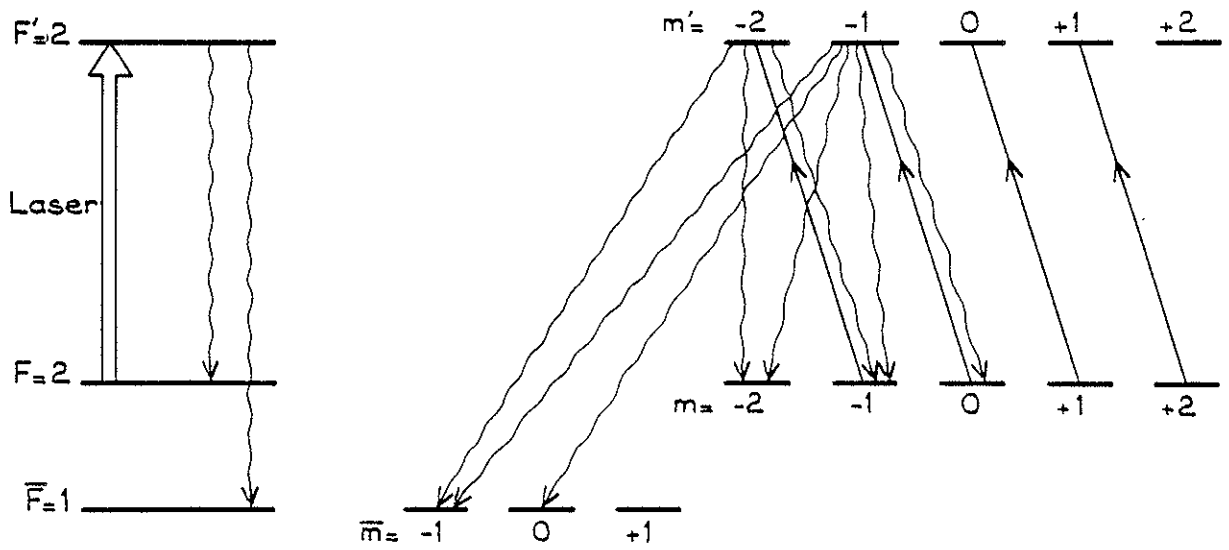


Figure IV-1

Schéma du pompage optique et notations.

Cas de la transition $F=2 \leftrightarrow F'=2$
 avec une lumière excitatrice σ^- ($q=-1$)
 (seules les désexcitations des niveaux
 $m'=-2$ et -1 ont été indiquées).

d) On désigne par $p_m(t)$, respectivement $p_{\bar{m}}(t)$, les populations des sous-niveaux $|F, m\rangle$, respectivement $|\bar{F}, \bar{m}\rangle$, à l'instant t .

e) Le nombre d'atomes dans l'état $|F, m\rangle$ qui sont excités dans l'état $|F', m'\rangle$ pendant le temps dt par le rayonnement accordé sur la composante hyperfine $F \leftrightarrow F'$ et de polarisation q est

$$dn = p_m(t) B_{mm'q}^{FF'} W dt$$

où W est la densité d'énergie du rayonnement.

$$B_{mm'q}^{FF'} \times W = \frac{\binom{F' \quad 1 \quad F}{-m' \quad q \quad m}^2 (2F+1)(2F'+1) \left\{ \begin{matrix} F & I & F' \\ J' & I & J \end{matrix} \right\}}{T_p} = \frac{K_{mm'q}^{FF'}}{T_p}$$

$q = \pm 1$ pour une polarisation σ^\pm ($q=0$ pour une polarisation π)

$\frac{1}{T_p}$ est la vitesse de pompage ; c'est une quantité indépendante de F, F', m, m' et q ; elle est proportionnelle à la densité d'énergie W du rayonnement [53]. Toute la dépendance en F, F', m, m' et q est contenue dans le coefficient $K_{mm'q}^{FF'}$.

f) Initialement on a $p_m(0) = p_{\bar{m}}(0) = \frac{N_0}{4I+2}$. Les $4I+2$ sous-niveaux de l'état fondamental sont équipéuplés. On soumet ce système à l'excitation optique pendant un temps t_0

$t_0 = \frac{\ell}{v}$: ℓ : longueur de la zone d'interaction avec la lumière,
 v : vitesse des atomes.

On cherche les populations après excitation $p_m(t_0)$ et $p_{\bar{m}}(t_0)$.

B-3 - EQUATIONS DU PROBLEME.

Pour mener à bien ce calcul nous nous sommes inspirés du calcul fait par P. CERREZ [54].

La population d'un niveau m_0 obéit à l'équation différentielle :

$$\frac{dp_{m_0}}{dt} = - p_{m_0} \sum_{m'} (1 - E_{m', m_0}) \frac{K_{m_0 m' q}^{FF'}}{T_p} + \sum_{m'} \sum_{m \neq m_0} \frac{E_{m', m_0} K_{mm' q}^{FF'}}{T_p} p_m \quad (1)$$

Le premier terme représente la perte de population due à l'excitation optique suivie d'une désexcitation vers un sous-niveau du fondamental différent de m_0 .

Le deuxième terme représente le gain de population venant des autres niveaux $m \neq m_0$ via tous les états excités m' possibles.

La population d'un niveau \bar{m} obéit de même à l'équation

$$\frac{d p_{\bar{m}}}{dt} = \sum_m \sum_{m'} \frac{E_{m', \bar{m}} K_{mm' q}^{FF'}}{T_p} \times p_m \quad (2)$$

(1) et (2) forment un système de $4I+2$ équations différentielles linéaires homogènes qui peut s'écrire sous forme matricielle

$$\frac{d}{dt} \begin{pmatrix} p_m \\ \vdots \\ p_{\bar{m}} \\ \vdots \end{pmatrix} = \frac{1}{T_p} \times M_q^{F, F'} \begin{pmatrix} p_m \\ \vdots \\ p_{\bar{m}} \\ \vdots \end{pmatrix} \quad \frac{dP}{dt} = \frac{1}{T_p} M_q^{F, F'} \cdot P \quad (3)$$

où $M_q^{FF'}$ est une matrice $(4I+2) \times (4I+2)$ qui dépend de la transition $F \leftrightarrow F'$ étudiée et de la polarisation de la lumière.

De plus $\frac{1}{T_p} = \alpha \times W$ où α est une constante.

(3) peut s'écrire en posant $u = W \cdot t$

$$\boxed{\frac{dP}{du} = \alpha M_q^{FF'} \times P} \quad (4)$$

Les populations des différents sous-niveaux sont fonctions de la variable $u = W \cdot t$.

Un programme permet de calculer l'évolution des populations $p_m(u)$ et $p_{\bar{m}}(u)$ en fonction de u (c'est-à-dire de résoudre numériquement le

systeme (4)) et ceci pour chaque transition $F \leftrightarrow F'$ et pour chaque polarisation ($q = \pm 1$) possible. Comme on ne s'intéresse, pour ces atomes, qu'à la valeur de m_J en champ fort, le programme regroupe ensemble les populations des sous-niveaux correspondant à $m_J = +\frac{1}{2}$ et calcule directement

$$N(u)_{(m_J = +\frac{1}{2})} = \sum_{m_F \neq -(I+\frac{1}{2})} p(u) \quad |F = I + \frac{1}{2}, m_F\rangle \quad * \quad (5)$$

Pour $u = 0$, du fait des conditions initiales, on trouve

$$N(0)_{(m_J = +\frac{1}{2})} = (2I+1) \times \frac{N_0}{4I+2} = \frac{N_0}{2}$$

Si l'hexaple était parfait (transmission nulle pour les états $m_J = -\frac{1}{2}$) le fond serait proportionnel à $\frac{N_0}{2}$ et le signal à

$$N(u_C)_{(m_J = +\frac{1}{2})} = \frac{N_0}{2} \quad (\text{voir figure IV-2})$$

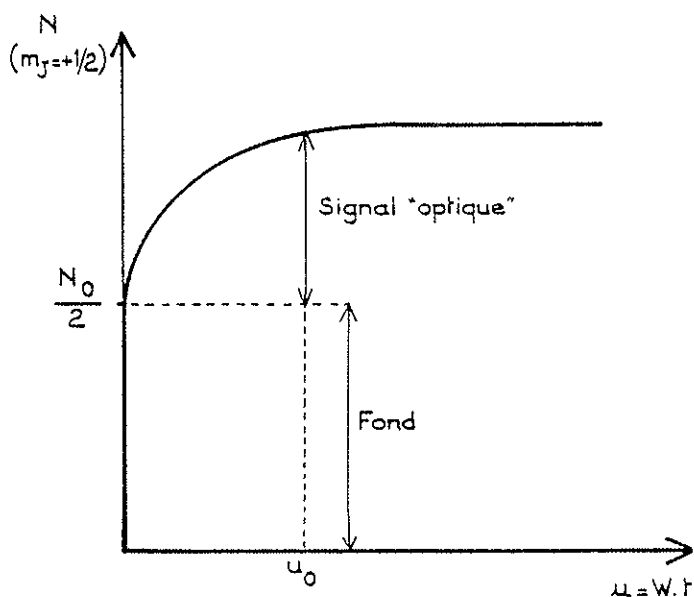


Figure IV-2

Allure du signal de pompage en fonction de $u = W t$

W : densité d'énergie du rayonnement

t : temps d'interaction

* Remarque : La formule (5) n'est valable que si le moment magnétique est positif.

B-4 - RESULTATS.

Le résultat de la résolution numérique des équations (4) dans le cas du sodium ^{23}Na (spin nucléaire $I = 3/2$) est indiqué sur la figure IV-3 pour les quatre composantes hyperfines de la raie D_1 . Des calculs analogues ont été effectués pour les spins nucléaires $I = 1, 2, 3, 4$ et $5/2$. Sur la figure IV-3 on constate que le signal augmente d'abord avec Wt (en valeur absolue), puis se sature ; il y a pour chaque composante étudiée une valeur optimale de Wt . Au delà de cette valeur une augmentation de W produira uniquement un élargissement du signal. Théoriquement W devrait donc être ajusté pour chaque composante étudiée de chaque isotope. En pratique Wt peut être choisi dans une plage autour de la valeur optimale et si l'on choisit Wt dans la partie commune de ces différentes plages (zone hachurée de la fig. IV-3) on pourra le maintenir constant pour toutes les composantes.

Le temps t est égal à $t_0 = \frac{\lambda}{v}$ où λ est la longueur éclairée du jet ; on joue donc sur W pour se placer dans les zones hachurées de la figure IV-3. En pratique une puissance par unité de surface de quelques mW/cm^2 est satisfaisante dans tous les cas. On peut remarquer cependant sur la figure 3, que le pompage est plus rapide pour les transitions qui font intervenir le niveau supérieur $F'=2$, plus lent pour les transitions qui font intervenir le niveau supérieur $F'=1$. On aura donc intérêt à augmenter W quand on passe d'une transition du premier type à une transition du second. Le calcul montre que cet effet est d'autant plus important que le spin I est petit.

En ce qui concerne le choix entre σ^+ et σ^- pour la polarisation de la lumière excitatrice, la figure IV-3 montre clairement qu'il faut choisir σ^- pour les composantes négatives et σ^+ pour les composantes positives.

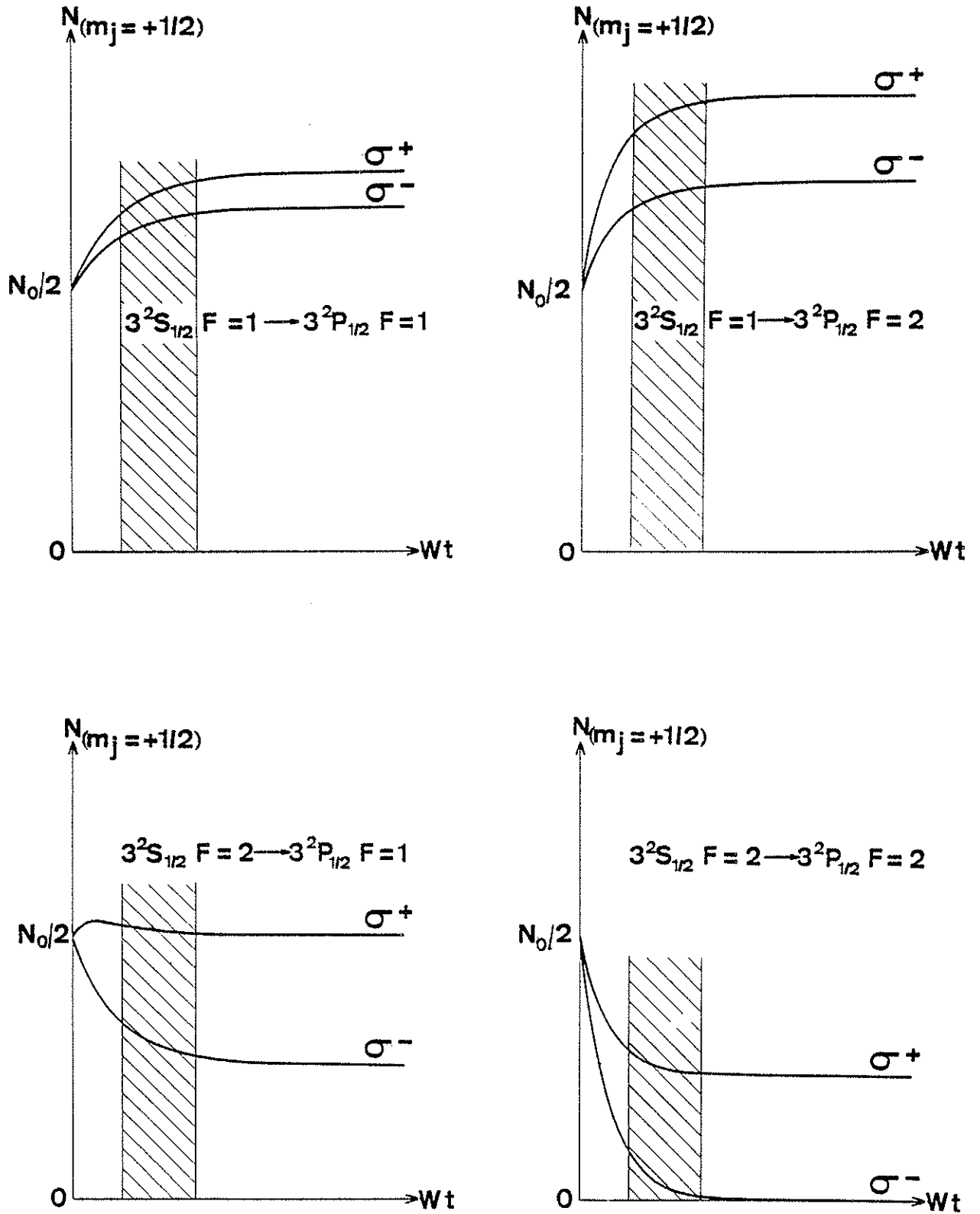


Figure IV-3

Amplitude des signaux produits par le pompage optique pour un isotope de spin $I=3/2$ - Cas de la raie D_1 .

B-5 - CONSIDERATIONS ELEMENTAIRES SUR LES VALEURS LIMITES
DES SIGNAUX.

a) Introduction.

On constate sur la figure IV-3 que chaque signal "optique" tend asymptotiquement vers une valeur limite lorsque $W.t$ tend vers l'infini. Des considérations élémentaires permettent dans certains cas de prévoir ces valeurs ou de les majorer. Nous les exposons ici dans le cas de la raie D_1 du sodium ^{23}Na ($I=3/2$; $\mu_I > 0$) ; on indiquera également comment les signaux se modifient lorsque l'on passe à un spin $I \neq 3/2$.

L'état fondamental comprend deux sous-niveaux hyperfins $F=1$ et $F=2$ et les sous-niveaux Zeeman F, m_F peuvent se grouper en deux familles :

α - Ceux qui correspondent à $m_J = +\frac{1}{2}$ en champ fort (tous les sous-niveaux du niveau $F=2$ sauf le niveau $F=2, m_F = -2$) ; on les appellera des niveaux (+).

β - Ceux qui correspondent à $m_J = -\frac{1}{2}$ (tous les sous-niveaux de $F=1$ plus le sous-niveau $F=2, m_F = -2$) ; on les appellera des niveaux (-) (voir Rappels I-C).

Nous allons regarder ce qui se passe lorsque le laser est accordé successivement sur chaque composante hyperfine de la raie D_1 .

b) Le laser est accordé sur la transition $F=2, F'=1$.

Le pompage hyperfin a pour effet de vider le niveau $F=2$ qui comprend surtout des états (+). On doit donc choisir la polarisation de la lumière de façon à vider le maximum d'états (+). La présence de l'état (-) $F=2, m_F = -2$ conduit donc à préférer une polarisation σ^- à une polarisation σ^+ .

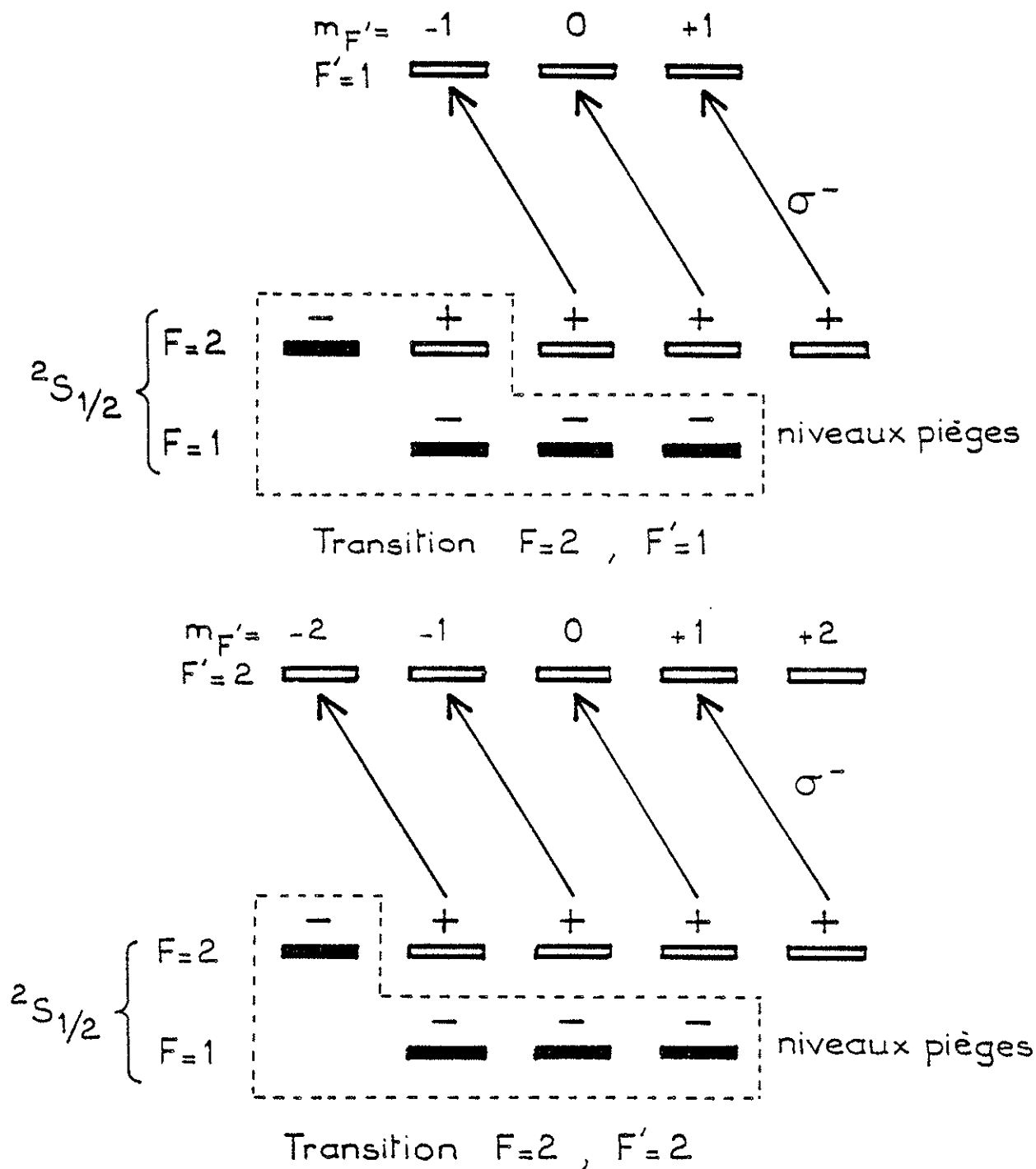


Figure IV-4

Raie D_1 - Composantes négatives (sous-niveau du fondamental $F=2$).

On appelle "niveaux-pièges" dans la suite de l'exposé les niveaux qui ne sont pas connectés au niveau supérieur par la lumière (voir figure IV-4) ; on voit qu'il y a 4 niveaux pièges (-) et 1 niveau piège (+). C'est la présence de ce niveau piège (+) qui empêche le pompage hyperfin de transférer tous les atomes du jet dans des états (-), donc qui empêche que l'on ait le signal maximum $|S| = \frac{N_0}{2}$ (voir fig. IV-3). On peut remarquer que la population finale du niveau piège (+) est certainement supérieure à $\frac{N_0}{8}$ (population initiale) donc que, dans ce cas, le signal "optique" (voir fig. IV-2 et fig. IV-3) est certainement inférieur à $\frac{3N_0}{8}$ (en valeur absolue) ($\frac{N_0}{2} \frac{2I}{2I+1}$ dans le cas $I \neq \frac{3}{2}$). On peut remarquer aussi que le choix d'une polarisation σ^+ , en remplaçant un niveau piège (-) par un niveau piège (+), est certainement défavorable.

c) Le laser est accordé sur la transition $F=2$, $F'=2$.

Si le laser est polarisé σ^- tous les niveaux pièges sont des niveaux (-), le signal peut atteindre sa valeur maximale possible $\frac{N_0}{2}$ (figure IV-4). Une polarisation σ^+ est défavorable.

d) Le laser est accordé sur la transition $F=1$, $F'=1$ (fig. IV-5).

On cherche à transférer les atomes des états (-) dans des états (+).

On peut déjà remarquer que, comme un des états (-) appartient au sous-niveau $F=2$, seuls $2I$ niveaux (-) pourront être dépeuplés alors qu'il en existe $2I+1$. Le signal (comme défini sur la figure IV-2) sera toujours inférieur à $\frac{N_0}{2} \frac{2I}{2I+1}$ ($= \frac{3}{4} \frac{N_0}{2}$ dans notre cas $I=3/2$).

On voit donc que les signaux positifs, même si le pompage est totalement efficace, sont moins grands que les signaux négatifs, en particulier pour I faible. Pour la transition $F=1 \rightarrow F'=1$ regardons ce qui se passe lorsque la lumière excitatrice est polarisée σ^+ .

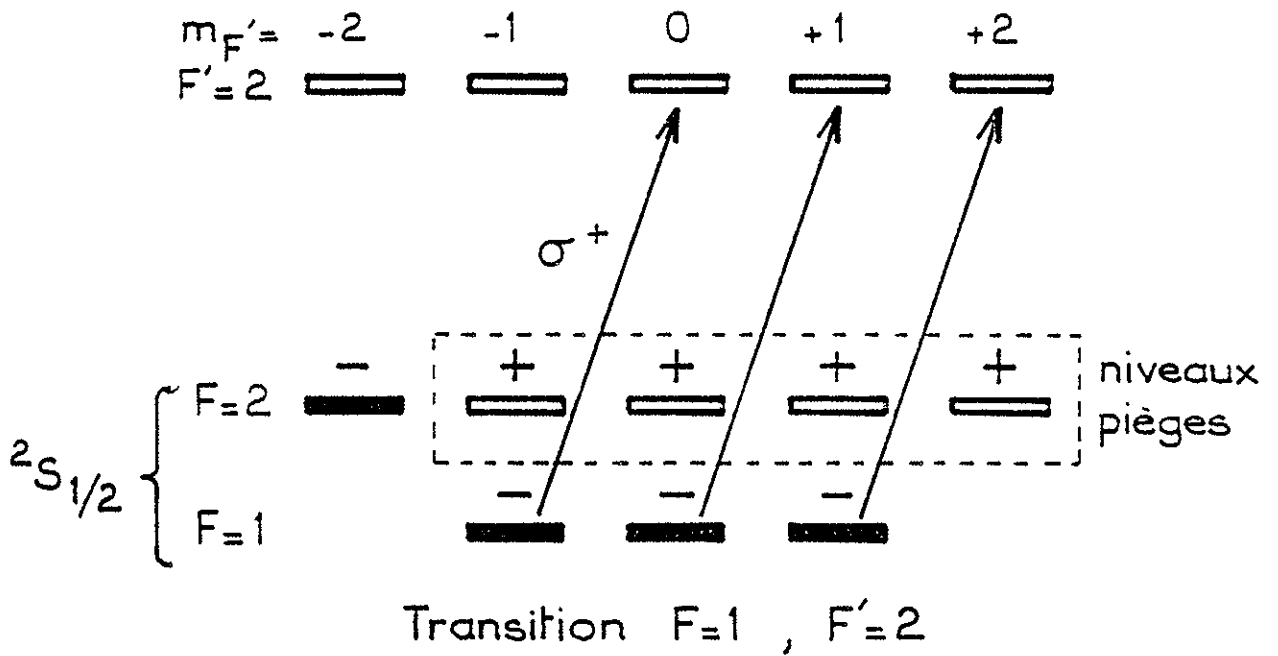
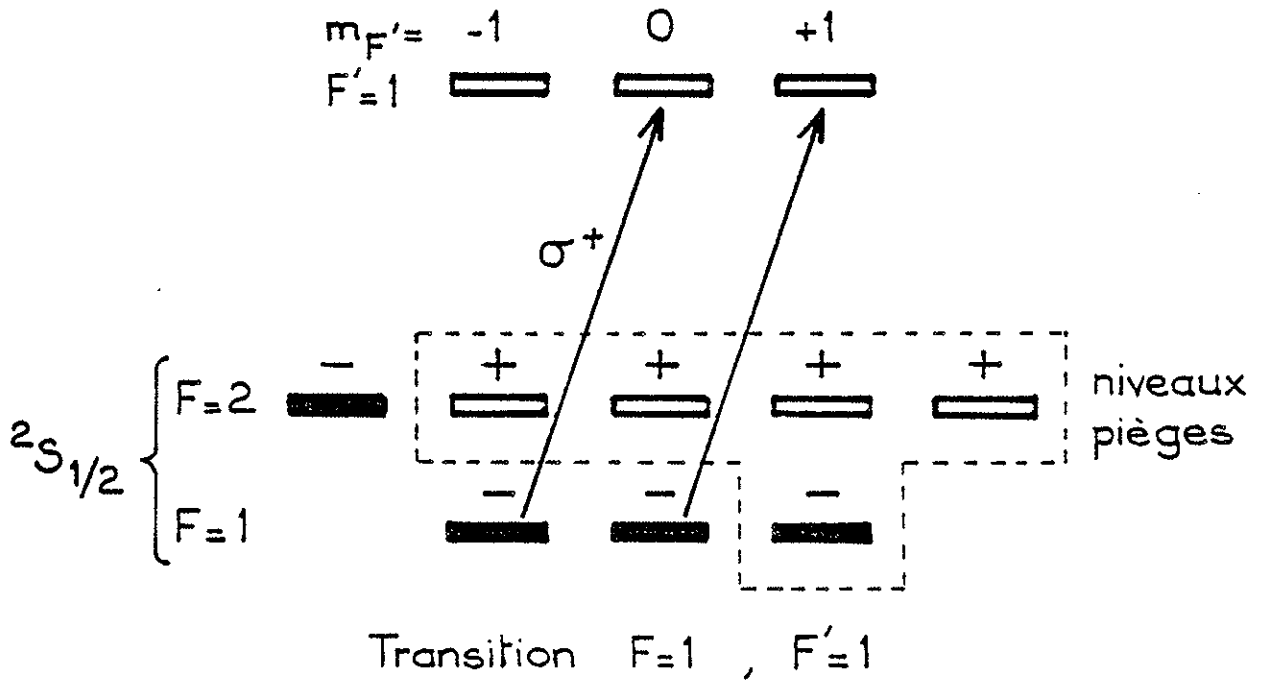


Figure IV-5

Raie D_1 - Composantes positives (sous-niveau du fondamental $F=1$).

La présence d'un niveau (-) parmi les niveaux pièges fait que le signal est certainement inférieur à la valeur limite pour les signaux positifs calculée ci-dessus. Dans le cas du sodium 23 le signal pour cette transition est certainement inférieur à $\frac{N_0}{4}$ car seuls deux sous-niveaux peuvent être vidés (voir fig. IV-5).

Remarque : Le niveau $F=2$, $m_F=-2$ a été exclu des niveaux pièges car aucun atome ne peut retomber sur ce niveau.

Une polarisation σ^- serait encore plus défavorable dans la mesure où le sous-niveau $F=2$, $m_F=-2$ (niveau (-)) remplacerait le sous-niveau $F=2$, $m_F=2$ (niveau (+)) parmi les niveaux pièges.

e) Le laser est accordé sur les transitions $F=1$, $F'=2$ (fig. IV-5).

Si le laser est polarisé σ^+ , tous les sous-niveaux pièges sont des sous-niveaux (+) et le signal de pompage peut atteindre sa valeur maximale qui est $\frac{N_0}{2} \frac{2I}{2I+1}$ pour un signal positif, comme il a été montré précédemment.

f) Conclusions.

On peut remarquer que tous les résultats que l'on vient de déduire de considérations élémentaires sont en accord avec les courbes données sur la figure IV-3 et calculées numériquement.

- Parmi les quatre composantes hyperfines, les deux composantes qui mettent en jeu le niveau $F=I+\frac{1}{2}$ conduisent à des signaux négatifs, les deux autres à des signaux positifs.

- Les signaux négatifs sont inférieurs ou égaux à $\frac{N_0}{2}$ (en module);
les signaux positifs sont inférieurs ou égaux à $\frac{N_0}{2} \times \frac{2I}{2I+1}$.

- Le choix de la polarisation étant limité à σ^+ et σ^- , on a intérêt à choisir σ^+ pour les signaux positifs et σ^- pour les signaux négatifs.

- Les composantes hyperfines correspondant au niveau supérieur $F' = I + \frac{1}{2}$ conduisent à des signaux qui atteignent les valeurs maximales indiquées plus haut ($\frac{N_0}{2}$ pour $F = I + \frac{1}{2} \longleftrightarrow F' = I + \frac{1}{2}$ et $\frac{N_0}{2} \times \frac{2I}{2I+1}$ pour $F = I - \frac{1}{2} \longleftrightarrow F' = I + \frac{1}{2}$).

- Les autres composantes conduisent à des signaux plus faibles par suite de la présence de "niveaux pièges" du mauvais signe et ceci d'autant plus que I est faible. Dans ce cas seul le calcul complet peut fournir la valeur maximale que ces signaux peuvent atteindre (valeur asymptotique).

Pour ces deux composantes, il est possible qu'une polarisation σ soit plus favorable.

C - CALCUL de la LARGEUR en FREQUENCE des SIGNAUX.

C-1 - HYPOTHESES SIMPLIFICATRICES ET NOTATIONS.

Nous allons calculer la dépendance en fréquence des signaux obtenus par pompage optique dans un cas simple.

On considère un jet atomique monocinétique : les atomes ont tous la même vitesse \vec{v} en amplitude et direction.

- Le système atomique comporte 3 niveaux : un niveau excité a et deux sous-niveaux b et c pour l'état fondamental (voir fig. IV-6).

- Le niveau a peut se désexciter vers les niveaux b et c avec les taux d'émission spontanée γ_b et γ_c .

$\gamma = \gamma_b + \gamma_c$ est l'inverse de la durée de vie du niveau a : $\tau = \frac{\gamma^{-1}}{2\pi}$.

- Un rayonnement laser monochromatique de direction de propagation perpendiculaire au jet atomique éclaire celui-ci sur une longueur l .

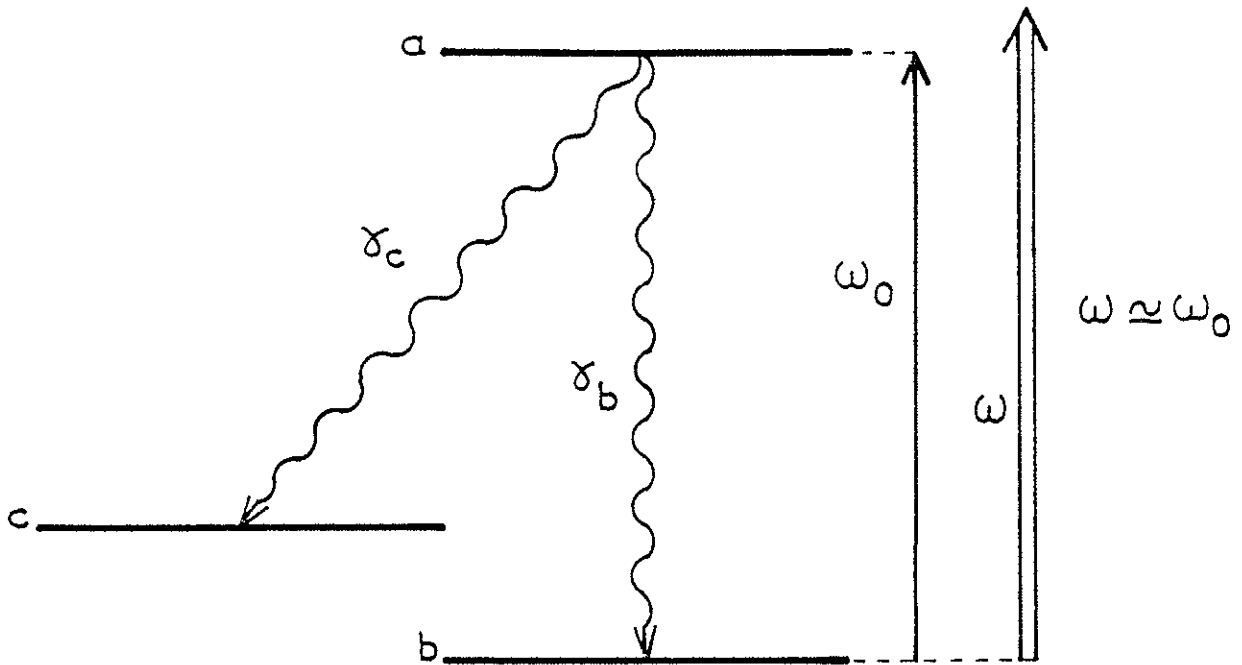


Figure IV-6 : Le système à 3 niveaux étudié.

La fréquence ω du laser est voisine de $\omega_0 = \frac{E_a - E_b}{\hbar}$, E_a et E_b étant les énergies des niveaux a et b.

- E_c est suffisamment différent de E_b pour que l'on puisse supposer que le rayonnement laser ne couple pas les états c et a.

- On considère un ensemble de N_0 atomes éclairés, à partir de l'instant $t=0$, par une onde électromagnétique $\vec{E} = \vec{\epsilon} \cdot E_0 \cos \omega t$.

- Initialement on a $\frac{N_0}{2}$ atomes dans l'état b et $\frac{N_0}{2}$ atomes dans l'état c .

C-2 - EQUATIONS DIFFERENTIELLES DU SYSTEME.

L'ensemble des N_0 atomes est décrit par une matrice densité $\sigma(t)$. Les éléments diagonaux $\sigma_a, \sigma_b, \sigma_c$ représentent les populations des niveaux a, b, c et les éléments non diagonaux $\sigma_{ab} = \sigma_{ba}^*$ etc... représentent les cohérences. Comme $\omega \sim \omega_0$ on peut se placer dans l'approximation du champ tournant et, en posant $\sigma_{ab} = \rho_{ab} e^{-i\omega t}$, on peut écrire l'évolution des éléments de la matrice densité sous forme d'un système d'équations différentielles linéaires à coefficients constants (équations de Bloch optiques)

$$\left. \begin{aligned} \dot{\sigma}_a &= -\gamma \sigma_a && -\frac{i\Omega}{2} (\rho_{ab} - \rho_{ba}) \\ \dot{\sigma}_b &= \gamma_b \sigma_a && +\frac{i\Omega}{2} (\rho_{ab} - \rho_{ba}) \\ \dot{\sigma}_c &= \gamma_c \sigma_a \\ \dot{\rho}_{ab} &= -\frac{\gamma}{2} \rho_{ab} + i(\omega - \omega_0) \rho_{ab} + \frac{i\Omega}{2} (\sigma_a - \sigma_b) \\ \dot{\rho}_{ba} &= \dot{\rho}_{ab}^* \end{aligned} \right\} \quad (1)$$

Ω est la fréquence de Rabi définie par $\Omega = \frac{dE_0}{\hbar}$ où d est l'élément de matrice du produit scalaire $\vec{D} \cdot \vec{\epsilon}$ (\vec{D} dipole atomique, $\vec{\epsilon}$ direction de polarisation de l'onde)

$$d = \langle a | \vec{D} \cdot \vec{\epsilon} | b \rangle$$

On déduit du système (1) la solution indépendante du temps

$$\begin{cases} \sigma_c = N_0 \\ \sigma_a = \sigma_b = 0 \end{cases}$$

ce qui fournit la solution au problème posé pour $t = \infty$

$$\sigma_c(\infty) = N_0 .$$

Le signal que l'on détecte par notre méthode est l'accroissement de la population du niveau c .

L'équation (2) montre que si l'on éclaire les atomes pendant un temps infini, ou en tout cas suffisamment long pour que l'on ait atteint le régime stationnaire, on doit avoir un signal

$$\sigma_c(\infty) - \sigma_c(0) = N_0 - \frac{N_0}{2} = \frac{N_0}{2}$$

et ceci indépendamment de la fréquence du laser ω .

Bien sûr, les atomes du jet ne sont éclairés que pendant un temps $t_0 = \frac{l}{v}$; il faudrait donc étudier le régime transitoire et calculer le signal $s = \sigma_c(t_0) - \sigma_c(0) = \sigma_c(t_0) - \frac{N_0}{2}$ qui doit être une fonction de $(\omega - \omega_0)$.

La résolution du système (1) ne peut être obtenue que de façon numérique sur machine (Il faut trouver les valeurs propres d'une matrice 5×5 dont une seule est évidente). Nous n'avons pas fait cette résolution numérique et nous avons préféré remplacer notre problème par un problème voisin pour lequel on sait calculer la solution. Cette méthode qui s'applique au cas des vapeurs atomiques a déjà été également utilisée pour traiter des problèmes où les atomes sont dans un jet atomique [16].

C-3 - PASSAGE à UN SYSTEME D'EQUATIONS INDEPENDANTES DU TEMPS.

On s'intéresse aux atomes situés dans la zone d'interaction avec la lumière (N_0 atomes décrits par une matrice densité σ). Pour écrire les équations d'évolution des éléments de la matrice densité, il faut rajouter dans le système d'équations différentielles (1) des

termes pour prendre en compte les atomes du jet qui rentrent dans la zone d'interaction (termes sources) et des termes pour tenir compte du fait que les atomes quittent la zone éclairée au bout d'un temps

$$t_0 = \frac{\ell}{v} = \frac{1}{\Gamma} \quad (\text{termes de relaxation}).$$

- Par unité de temps, on injecte dans la zone d'interaction

$$\sigma_b(0) \Gamma = \frac{N_0}{2} \Gamma \quad \text{atomes dans l'état } b \quad ,$$

$$\sigma_c(0) \Gamma = \frac{N_0}{2} \Gamma \quad \text{atomes dans l'état } c \quad .$$

- Chaque atome du jet monocinétique reste en interaction avec la lumière pendant le temps $t_0 = \frac{\ell}{v}$ (le même pour tous). Pour tenir compte du flux d'atomes qui quittent la zone d'interaction, on rajoute dans les équations (1) des termes de relaxation ($-\Gamma \sigma_{ij}$ pour l'équation $\dot{\sigma}_{ij} = \dots$). C'est-à-dire que l'on prend un modèle pour lequel les atomes restent éclairés en moyenne pendant un temps $t_0 = \frac{1}{\Gamma}$ et quittent la zone d'interaction de façon aléatoire avec une probabilité par unité de temps Γ . Le nouveau système d'équations différentielles s'écrit alors :

$$(2) \left\{ \begin{array}{l} \dot{\sigma}_a = -\gamma \sigma_a - \Gamma \sigma_a - \frac{i\Omega}{2} (\rho_{ab} - \rho_{ba}) \\ \dot{\sigma}_b = \gamma_b \sigma_a - \Gamma[\sigma_b - \sigma_b(0)] + \frac{i\Omega}{2} (\rho_{ab} - \rho_{ba}) \\ \dot{\sigma}_c = \gamma_c \sigma_a - \Gamma[\sigma_c - \sigma_c(0)] \\ \dot{\rho}_{ab} = -\frac{\gamma}{2} \rho_{ab} - \Gamma \rho_{ab} + i(\omega - \omega_0) \rho_{ab} + \frac{i\Omega}{2} (\sigma_a - \sigma_b) \\ \dot{\rho}_{ba} = \dot{\rho}_{ab}^* \end{array} \right.$$

On peut ne s'intéresser qu'à la solution stationnaire, l'entrée et la sortie des atomes dans la zone d'interaction étant prises en considération par les termes sources et les termes de relaxation.

D'où le système (3) indépendant du temps que l'on va résoudre :

$$(3) \begin{cases} (-\gamma - \Gamma) \sigma_a - \frac{i\Omega}{2} (\rho_{ab} - \rho_{ba}) = 0 & (3a) \\ \gamma_b \sigma_a - \Gamma (\sigma_b - \sigma_b(0)) + \frac{i\Omega}{2} (\rho_{ab} - \rho_{ba}) = 0 & (3b) \\ \gamma_c \sigma_a - \Gamma [\sigma_c - \sigma_c(0)] = 0 & (3c) \\ [-\frac{\gamma}{2} - \Gamma + i(\omega - \omega_0)] \rho_{ab} + \frac{i\Omega}{2} (\sigma_a - \sigma_b) = 0 & (3d) \\ \rho_{ab} = \rho_{ba}^* \quad (\text{car } \rho_{ab}(0) = \rho_{ba}(0) = 0) & (3f) \end{cases}$$

La solution que l'on va trouver n'est valable que dans la limite

$$\gamma, \gamma_b, \gamma_c \gg \Gamma.$$

C-4 - SOLUTION DU PROBLEME.

La résolution du système fournit la solution :

$$\sigma_a = \sigma_b(0) \frac{\frac{\Omega^2}{2} \left(\frac{\Gamma + \frac{\gamma}{2}}{\Gamma + \gamma} \right)}{(\omega - \omega_0)^2 + \left(\Gamma + \frac{\gamma}{2} \right)^2 + \frac{\Omega^2}{2} \left(2 + \frac{\gamma_c}{\Gamma} \right) \left(\frac{\Gamma + \frac{\gamma}{2}}{\Gamma + \gamma} \right)} \quad (4)$$

$$\sigma_c = \sigma_c(0) + \frac{\gamma_c}{\Gamma} \sigma_a \quad (5)$$

Remarque :

Dans l'hypothèse $\gamma_c = 0$ $\gamma = \gamma_b$ on peut déjà remarquer que l'on trouve

$$\sigma_a = \sigma_b(0) \frac{\frac{\Omega^2}{2} \left(\frac{\Gamma + \frac{\gamma}{2}}{\Gamma + \gamma} \right)}{(\omega - \omega_0)^2 + \left(\Gamma + \frac{\gamma}{2} \right)^2 + \Omega^2 \left(\frac{\Gamma + \frac{\gamma}{2}}{\Gamma + \gamma} \right)}$$

La méthode utilisée (introduction de Γ pour décrire de façon phénoménologique la durée finie de l'interaction) suppose $\Gamma \ll \gamma$, d'où :

$$\sigma_a \approx \frac{\sigma_b(0) \frac{\Omega^2}{4}}{(\omega - \omega_0)^2 + \frac{\gamma^2}{4} + \frac{\Omega^2}{2}}$$

$$\boxed{\sigma_a = \frac{\sigma_b(0)}{2} \times \frac{\frac{\Omega^2}{2}}{(\omega - \omega_0)^2 + \frac{\gamma^2}{4} + \frac{\Omega^2}{2}}} \quad (6)$$

on retrouve le résultat pour un système à 2 niveaux a et b .

On revient à l'équation (4) et on suppose maintenant que γ_b et γ_c sont du même ordre de grandeur, donc $\Gamma \ll \gamma$, $\Gamma \ll \gamma_c$ et $\Gamma \ll \gamma_b$.

L'équation (4) se simplifie alors

$$\sigma_a = \sigma_b(0) \frac{\frac{\Omega^2}{4}}{(\omega - \omega_0)^2 + \frac{\gamma^2}{4} + \frac{\Omega^2 \gamma_c}{4\Gamma}} \quad (7)$$

et (5) devient $\sigma_c - \sigma_c(0) = \sigma_b(0) \frac{\frac{\gamma_c \Omega^2}{\Gamma \cdot 4}}{(\omega - \omega_0)^2 + \frac{\gamma^2}{4} + \frac{\Omega^2 \gamma_c}{4\Gamma}}$ (8)

$$\boxed{\sigma_c - \sigma_c(0) = \sigma_b(0) \frac{\frac{\gamma_c}{\Gamma} \times \frac{\Omega^2}{4}}{(\omega - \omega_0)^2 + \frac{\gamma^2}{4} + \frac{\gamma_c}{\Gamma} \times \frac{\Omega^2}{4}}} \quad (8)$$

Posons :

$$\alpha = \frac{2\Omega^2}{\gamma\gamma_b} = \frac{2E_0^2 d^2}{\hbar^2 \gamma\gamma_b}$$

$$(8) \text{ s'écrit } \sigma_c - \sigma_c(0) = \sigma_b(0) \times \frac{\frac{\gamma^2}{4} \alpha \frac{\gamma_b \gamma_c}{2\Gamma \gamma}}{(\omega - \omega_0)^2 + \frac{\gamma^2}{4} (1 + \alpha \frac{\gamma_b \gamma_c}{2\Gamma \gamma})} \quad (9)$$

Tel que α est défini, comme γ_b est proportionnel à d^2 , si l'on prend pour a un autre état excité de même durée de vie $\frac{\gamma^{-1}}{2\pi}$ (par exemple un autre niveau hyperfin de l'état excité) on ne change pas la valeur de α . De même si l'on intervertit les rôles des niveaux b et c .

α est donc une quantité proportionnelle à la puissance du rayonnement, le facteur de proportionnalité étant indépendant du choix de b et c parmi les sous-niveaux de l'état fondamental, du choix de a parmi les sous-niveaux de l'état excité et du choix de l'isotope étudié.

Avec la même définition du paramètre α , pour un système à deux niveaux a et b , l'équation (6) s'écrit :

$$\sigma_a = \frac{\sigma_b(0)}{2} \frac{\alpha \frac{\gamma^2}{4}}{(\omega - \omega_0)^2 + \frac{\gamma^2}{4} (1 + \alpha)} \quad (10)$$

avec $\alpha = \frac{2\Omega^2}{\gamma^2}$.

Le résultat de l'équation (10) est bien connu : on trouve une lorentzienne de largeur à mi hauteur $\gamma' = \gamma (1 + \alpha)^{\frac{1}{2}} > \gamma$. (10bis)

Cet élargissement s'appelle l'élargissement par effet de puissance.

Si maintenant on regarde l'équation (9), on voit que, dans le cas où il y a deux sous-niveaux dans l'état fondamental et pompage hyperfin, on trouve, pour le signal qui nous intéresse, une lorentzienne également mais de largeur à mi-hauteur

$$\gamma'' = \gamma \left(1 + \frac{\gamma_b \gamma_c}{2\gamma\Gamma} \alpha \right)^{\frac{1}{2}} \quad (11)$$

Beaucoup plus large par conséquent pour le même α , c'est-à-dire pour la même puissance laser, et pour un niveau excité de même durée de vie $\frac{\gamma^{-1}}{2\pi}$. En effet, γ_b , γ_c et γ sont du même ordre de grandeur et $\Gamma \ll \gamma$.

L'élargissement par pompage hyperfin pour un système à trois niveaux est donc beaucoup plus important que l'élargissement par effet de puissance pour un système à deux niveaux.

Remarque :

Cas limite $\Gamma \rightarrow 0$, c'est-à-dire le temps d'interaction $t \rightarrow \infty$; on trouve : $\sigma_c = \sigma_c(0) + \sigma_b(0) = N_0$ quelle que soit la fréquence ω . On retrouve le résultat de l'équation (2) du début du chapitre.

C-5 - ORDRES DE GRANDEUR ET VALEURS NUMÉRIQUES.

Si P est la puissance du rayonnement laser au niveau du jet et s la section droite du faisceau laser au niveau du jet, on peut écrire :

$$\Omega^2 = \frac{E_0^2 d^2}{\pi^2} = \frac{d^2}{\pi^2} \frac{8\pi P}{sc} = \frac{8\pi d^2}{c\pi^2} \left(\frac{P}{s}\right) \quad (\text{en unités CGS})$$

$$\gamma_b = \frac{64\pi^4 \nu^3}{3hc^3} |\langle a | e\vec{r} | b \rangle|^2 = \frac{64\pi^4 \nu^3}{hc^3} |\langle a | e\vec{r} \cdot \vec{\epsilon} | b \rangle|^2 = \frac{64\pi^4 \nu^3}{hc^3} d^2 \quad [55]$$

(en unités CGS) .

D'où la constante α définie plus haut

$$\alpha = \frac{2\Omega^2}{\gamma\gamma_b} = \frac{c^2}{\gamma v^3 h\pi} \left(\frac{P}{s}\right) = \frac{\lambda^3}{\gamma ch\pi} \left(\frac{P}{s}\right) .$$

On peut constater que α ne dépend que de la durée de vie du niveau excité $\frac{\gamma^{-1}}{2\pi}$ qui est la même pour tous les sous-niveaux de l'état excité de tous les isotopes et de la puissance laser par unité de surface au niveau du jet $\left(\frac{P}{s}\right)$.

VALEURS NUMERIQUES.

$$\gamma = 10 \text{ MHz}$$

$$\alpha = \frac{\lambda^3}{\gamma ch\pi} \left(\frac{P}{s}\right) = 0,3285 \left(\frac{P}{s}\right) \quad \text{avec} \quad \left(\frac{P}{s}\right) \text{ exprimé en mW/cm}^2$$

$$\alpha = 1 \quad \text{pour} \quad \frac{P}{s} = 3,01 \text{ mW/cm}^2 .$$

Dans le cas présent, si l'on considère que la puissance laser au niveau du jet est d'environ 5 mW avec une section droite du faisceau laser de 8 mm \times 8 mm , et que le laser interagit 2 fois avec le jet atomique à cause du miroir de renvoi, on trouve :

$$\frac{P}{s} = \frac{2 \times 5}{(0,8)^2} = 15,6 \text{ mW/cm}^2 \quad \text{d'où} \quad \alpha \approx 5,19 .$$

De plus $\Gamma = \frac{\bar{v}}{\ell}$ où ℓ est la longueur du jet éclairé ($\ell = 8 \text{ mm}$) et \bar{v} la vitesse moyenne des atomes du jet

$$\bar{v} = \frac{2}{\sqrt{\pi}} \left(\frac{2kT}{m}\right)^{\frac{1}{2}} \approx 1360 \text{ m/s} \quad \text{pour des atomes de } {}^{23}\text{Na} \text{ à } 2000^\circ\text{K} .$$

D'où

$$\Gamma = 1,7 \times 10^5 \text{ s}^{-1} .$$

Pour chaque sous-niveau de l'état excité $F' = I + \frac{1}{2}$ ou $F' = I - \frac{1}{2}$,

on a

$$\gamma = 10^7 \text{ s}^{-1}$$

Pour chaque composante hyperfine de la transition optique, la largeur de la lorentzienne de l'équation (9) donnée par l'équation (11) ne dépend que du niveau supérieur a choisi, les niveaux inférieurs b et c jouant des rôles symétriques.

Pour le sodium ^{23}Na ($I = 3/2$) les intensités relatives des 4 composantes hyperfines sont données sur la fig. IV-7.

On en déduit que pour les deux transitions $F=2 \leftrightarrow F'=2$ et $F=1 \leftrightarrow F'=2$ qui font intervenir le niveau excité $F'=2$ on a

$$\frac{\gamma_b \gamma_c}{\gamma^2} = \frac{1}{4}$$

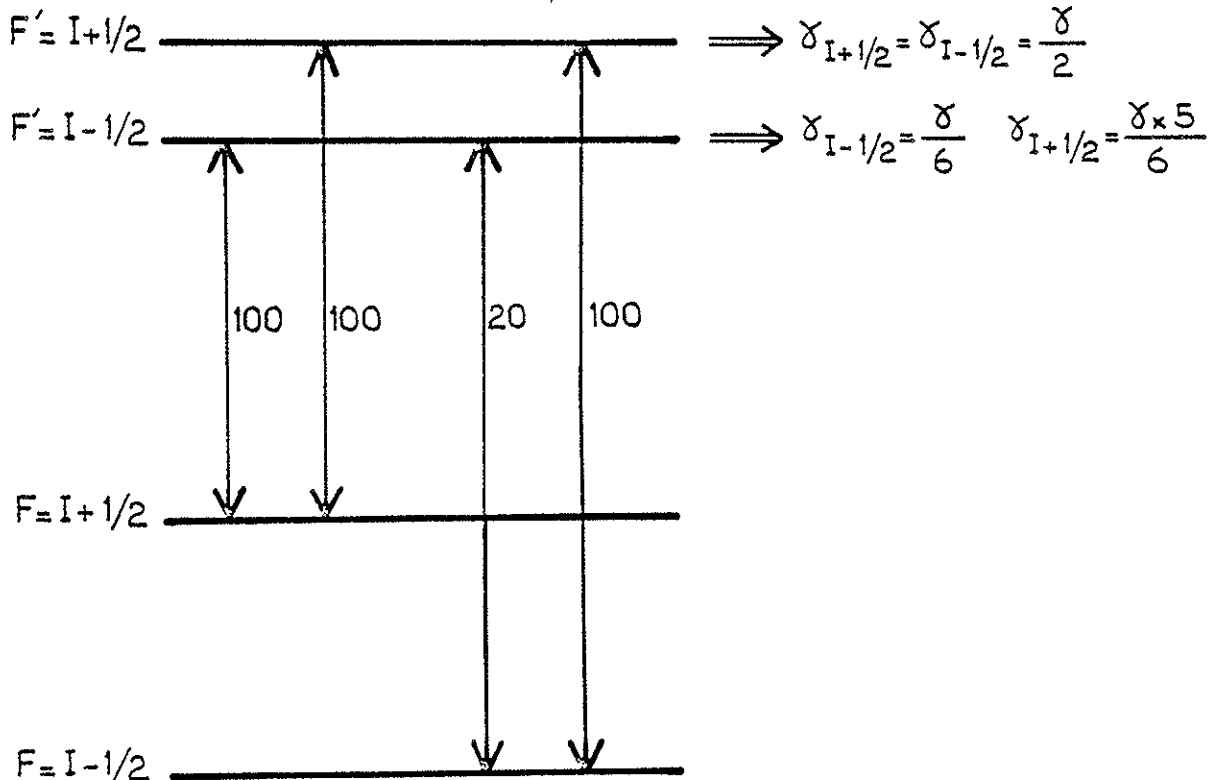


Figure IV-7 : Intensités relatives des 4 composantes hyperfines de la raie D_1 dans le cas du sodium ^{23}Na ($I = 3/2$).

On obtient donc une largeur

$$\gamma'' = \gamma \left[1 + \frac{1}{8} \frac{\gamma\alpha}{\Gamma} \right]^{\frac{1}{2}}$$

$$\gamma'' = \gamma \times 6,18 = 61,8 \text{ MHz}$$

$$\gamma'' = 61,8 \text{ MHz}$$

Pour les transitions qui font intervenir le niveau supérieur $F' = I - \frac{1}{2} = 1$, c'est-à-dire les transitions $F=1 \longleftrightarrow F'=1$ et

$F=2 \longleftrightarrow F'=1$, on a $\frac{\gamma_b \gamma_c}{\gamma^2} = \frac{5}{6} \times \frac{1}{6} = \frac{5}{36}$, donc une largeur

$$\gamma'' = \gamma \left[1 + \frac{5}{72} \frac{\gamma\alpha}{\Gamma} \right]^{\frac{1}{2}}$$

$$\gamma'' = \gamma \times 4,71$$

$$\gamma'' = 47,1 \text{ MHz}$$

et deux raies moins "larges" que les deux premières.

Remarque :

Par comparaison pour un système à deux niveaux et pour la même puissance lumineuse, l'élargissement par effet de puissance serait

$$\gamma' = \gamma (1 + \alpha)^{\frac{1}{2}} \quad (\text{voir équation 10bis})$$

$$\gamma' \approx 24,9 \text{ MHz}$$

On peut noter que les quatre composantes hyperfines se groupent par deux suivant le niveau supérieur intervenant dans la transition. L'élargissement par effet de pompage est plus grand pour les transitions mettant en jeu le niveau excité $F' = I + \frac{1}{2} = 2$ que pour les transitions mettant en jeu le niveau $F' = I - \frac{1}{2} = 1$. La même remarque a déjà été faite au paragraphe précédent en ce qui concerne les vitesses de pompage (§.IV-b, fig. IV-3) et il est normal de retrouver le même résultat ici car les deux phénomènes (vitesse de pompage et élargissement des raies) sont liés.

| I | $\frac{\gamma_b \gamma_c}{\gamma^2}$ pour $F' = I - \frac{1}{2}$ | $\frac{\gamma_b \gamma_c}{\gamma^2}$ pour $F' = I + \frac{1}{2}$ |
|---------------|--|--|
| 1 | 0,099 | 0,247 |
| $\frac{3}{2}$ | $\frac{5}{36} \approx 0,139$ | $\frac{1}{4} \approx 0,250$ |
| 2 | 0,160 | 0,249 |
| $\frac{5}{2}$ | 0,173 | 0,247 |
| 3 | 0,181 | 0,245 |
| 4 | 0,193 | 0,242 |

Figure IV-8 : Valeur de $\frac{\gamma_b \gamma_c}{\gamma^2}$ pour tous les spins nucléaires possibles et pour les deux sous-niveaux excités $F' = I + \frac{1}{2}$ et $F' = I - \frac{1}{2}$ possibles.

D'après l'équation (11), plus la quantité $\frac{\gamma_b \gamma_c}{\gamma^2}$ est grande, plus l'élargissement est grand à puissance laser constante.

On peut trouver que pour les différentes valeurs de I la quantité $\frac{\gamma_b \gamma_c}{\gamma^2}$ reste voisine de sa valeur maximale de $\frac{1}{4}$ lorsque le niveau supérieur est $F' = I + \frac{1}{2}$. Par contre, pour le niveau supérieur

$F' = I - \frac{1}{2}$ la quantité $\frac{\gamma_b \gamma_c}{\gamma^2}$ est toujours inférieure à $\frac{1}{4}$ et d'autant plus faible que I est petit (voir fig. IV-8) :

$$\left(\frac{\gamma_b \gamma_c}{\gamma^2} = 0,099 \text{ pour } I=1 \text{ et } \frac{\gamma_b \gamma_c}{\gamma^2} = 0,193 \text{ pour } I=4 \right).$$

Le pompage hyperfin est donc nettement plus lent pour ces transitions ($F = I + \frac{1}{2}$ ou $F = I - \frac{1}{2}$ vers $F' = I - \frac{1}{2}$), en particulier pour I faible.

C-6 - LARGEUR EN FREQUENCE DES RAIES.

Tant que la largeur en fréquence γ'' calculée au paragraphe précédent est inférieure à la largeur Doppler qui a été calculée au Chapitre III ($\Delta\nu_{\text{Doppler}} \approx 80 \text{ MHz}$) la largeur en fréquence des signaux observés sera déterminée par la largeur Doppler et une augmentation de la puissance laser produira une augmentation du signal sans élargissement.

Lorsque γ'' devient de l'ordre de $\Delta\nu_{\text{Doppler}}$, tous les atomes du jet peuvent être "pompés" par la lumière, quel que soit leur décalage Doppler ; on atteint donc l'amplitude maximale du signal avec une largeur légèrement supérieure à la largeur Doppler (convolution d'une gaussienne et d'une lorentzienne de largeurs comparables). Si on augmente encore la puissance du laser envoyée sur le jet, on augmente γ'' . Lorsque γ'' devient très supérieure à la largeur Doppler, l'amplitude du signal n'augmente plus et les signaux s'élargissent uniquement. La puissance lumineuse est ajustée expérimentalement pour obtenir le signal aussi grand que possible et aussi étroit en fréquence que possible.

Les signaux observés, correspondant aux transitions pour lesquelles le pompage hyperfin est le plus efficace ($F' = I + 1/2$), ont une largeur en fréquence de 100 MHz, ce qui est un peu supérieur à la largeur Doppler (80 MHz), comme attendu. Pour ces transitions la largeur $\gamma'' = 61,8 \text{ MHz}$ (pour les conditions expérimentales de puissance et de géométrie du faisceau laser) est en effet comparable à la largeur Doppler.

Pour les autres transitions ($F' = I - \frac{1}{2}$) la largeur $\gamma'' = 47,1 \text{ MHz}$ est inférieure et les signaux correspondant à ces transitions n'atteignent pas leur valeur maximale ; il faudrait augmenter la puissance laser lorsque l'on observe ces transitions. Tout ce qui précède a été calculé numériquement pour $I = 3/2$. Les différences entre les différentes composantes (différences de valeurs asymptotiques et différences

de vitesses de pompage) sont d'autant plus importantes que I est faible. Elles tendent à s'atténuer lorsque \bar{I} augmente.

Tous ces phénomènes ont été effectivement observés expérimentalement avec une puissance laser et une géométrie du faisceau laser (section droite au niveau du jet) comparables aux valeurs utilisées dans ce paragraphe pour faire les calculs ($P \approx 5$ mW, $s \approx 0,64$ cm²).

V - RESULTATS ET CONCLUSIONS.

Les résultats obtenus sur les isotopes radioactifs de sodium en utilisant la méthode qui vient d'être décrite sont présentés dans ce chapitre. Cette présentation est volontairement très brève et l'interprétation nucléaire des résultats n'est pas abordée. Le lecteur peut, à ce sujet, se reporter à la publication donnée en annexe (Annexe VII).

A - PROCEDURE d'ENREGISTREMENT des RESULTATS.

Chaque séquence de mesure est démarrée par une impulsion de synchronisation délivrée par le P.S. 20 ms avant l'impulsion de protons. Le spectromètre de masse se trouve réglé sur la masse de l'isotope A. 2 ms après l'impulsion de protons, le comptage des ions correspondant à cet isotope est déclenché. Ce comptage s'effectue pendant une durée qui peut être ajustée entre 20 et 300 ms suivant la durée de vie de l'isotope considéré. Puis le spectromètre de masse est commuté automatiquement sur la masse d'un isotope A' abondant et de durée de vie assez longue (^{25}Na ou ^{26}Na). Les ions correspondant à cet isotope

A' sont comptés pendant 1 ou 2 secondes. Le spectromètre de masse est ensuite remis automatiquement sur la masse de l'isotope A en vue de la séquence de mesure suivante.

Le laser reste à une fréquence fixe pendant N impulsions de protons, N étant un nombre fixé à l'avance entre 1 et 100 ; après la Nième impulsion de protons, le système d'enregistrement des données fait avancer la fréquence laser d'un pas élémentaire du sigmamètre (le pas élémentaire du sigmamètre peut être choisi égal à $2^n \times 0,937$ MHz avec $n = 0, 1, 2, 3$).

On peut ainsi enregistrer simultanément dans plusieurs mémoires parallèles les spectres correspondant aux isotopes A et A' . On enregistre aussi le spectre de fluorescence de ^{23}Na donné par le jet auxiliaire et le balayage de la fréquence laser. On a ainsi pour chaque isotope A deux spectres de référence pour la mesure du déplacement isotopique : le spectre de l'isotope A' et le spectre de fluorescence du sodium stable ^{23}Na , ainsi qu'un étalonnage en fréquence donné par le sigmamètre.

La figure III-11 du Chapitre III montre la commutation du spectromètre de masse sur ^{28}Na puis sur ^{26}Na . Par suite de la courte durée de vie de ^{28}Na on peut remarquer que le signal de ^{28}Na décroît très rapidement et qu'il est inutile d'augmenter le temps de comptage pour cet isotope.

B - MESURE des SPINS NUCLEAIRES.

Le principe de la mesure des spins nucléaires I a été exposé brièvement au Chapitre I-F .

Le laser étant polarisé σ^- et sa fréquence étant accordée sur la transition ($^2S_{1/2}$, $F = I+1/2 \rightarrow ^2P_{3/2}$, $F' = I+3/2$) il n'y a pas de pompage hyperfin et le pompage optique Zeeman transfère toute la population du sous-niveau hyperfin $F = I+1/2$ du fondamental dans le sous-niveau Zeeman $F = I+1/2$, $m_F = -(I+1/2)$. Tous les atomes sont défocalisés par l'aimant hexapolaire et le signal d'ions est faible.

Si l'on applique un champ r.f. perpendiculaire au champ statique homogène B_0 après la zone d'interaction avec le laser (voir Chapitre II pour les détails expérimentaux) et si la fréquence r.f. est égale à la fréquence de la transition entre deux niveaux Zeeman adjacents, le champ de radio-fréquence égalise les populations des sous-niveaux Zeeman. La population du sous-niveau $F = I+1/2$, $m_F = -(I+1/2)$ est redistribuée sur tous les sous-niveaux Zeeman ($F = I+1/2$, m_F quelconque). Les atomes qui changent ainsi de sous-niveau sont focalisés par l'hexapole et le signal d'ions augmente (voir figure V-1a). La fréquence de transition, en champ faible B_0 , entre deux niveaux Zeeman adjacents est

$$\nu_{r.f.} = g_F \mu_0 B_0 / h \quad (1)$$

avec
$$g_F \approx \frac{F(F+1) + J(J+1) - I(I+1)}{2F(F+1)} g_J$$

(en négligeant un terme en g_I ($g_J \gg g_I$)) ;

pour le fondamental $J = \frac{1}{2}$ et $g_J \approx 2 \implies g_F \approx \frac{2}{2I+1}$

(1) devient
$$\boxed{\nu_{rf} = \frac{2\mu_0 B_0}{(2I+1) h}} \quad (2)$$

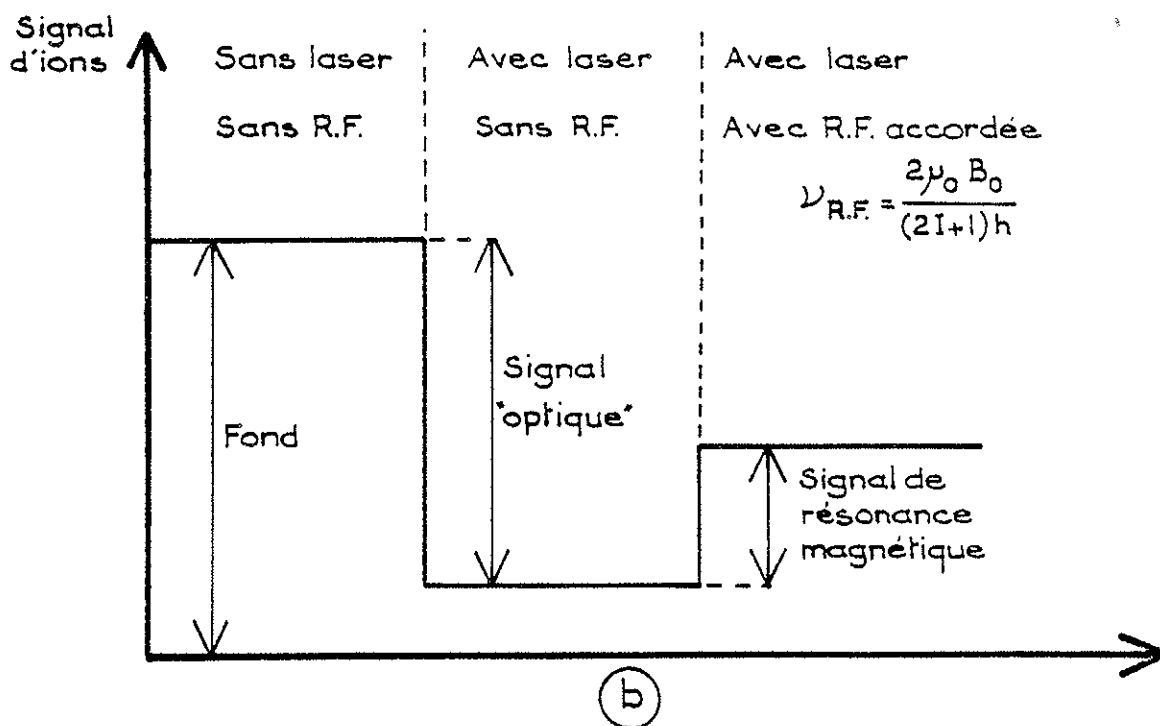
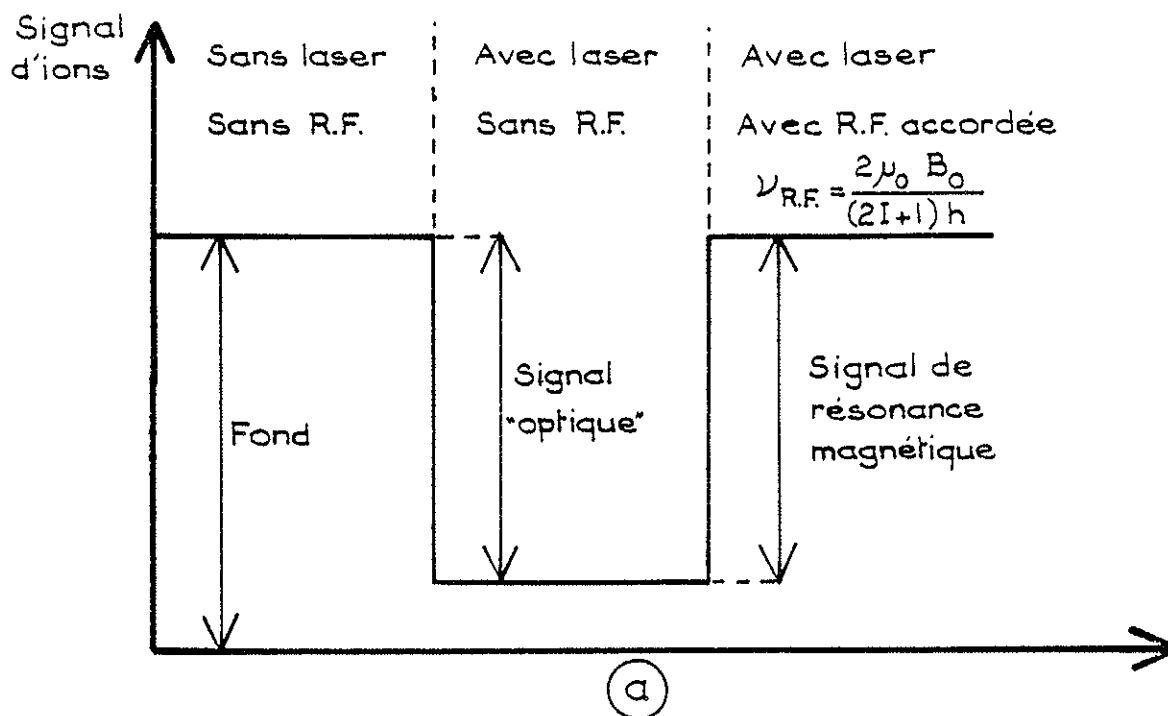
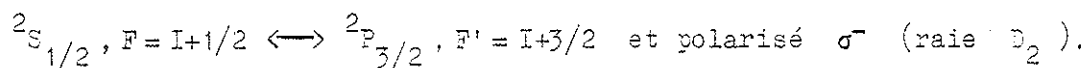
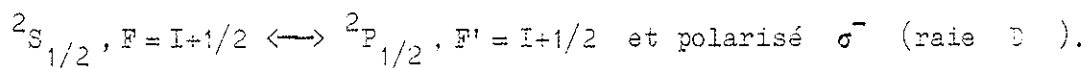


Figure V-1 : Principe de la mesure du spin nucléaire I .

a - Le laser est accordé sur la transition :



b - Le laser est accordé sur la transition :



Pour une fréquence ν_{rf} fixe donnée, il y a pour chaque valeur possible de I , une valeur de B_0 pour laquelle le signal d'ions derrière l'hexapole doit augmenter

$$B_0 = \frac{(2I+1) h \nu_{rf}}{2\mu_0} \quad (3)$$

La détermination de cette valeur de B_0 permet de choisir entre les différentes valeurs possibles de I .

Le signal d'ions obtenu en fonction du champ B_0 pour le sodium ^{25}Na est représenté sur la figure V-2. La largeur à mi-hauteur de cette courbe

$$\Delta B_0 \approx 0,5 \text{ Gauss}$$

correspondant à une largeur en fréquence $\Delta\nu = \frac{2\mu_B \Delta B_0}{h(2I+1)} \approx 250 \text{ KHz}$.

Vu la taille de la bobine r.f. on peut penser que le champ r.f. agit sur le jet sur une distance $l \approx 1 \text{ cm}$, ce qui donne une largeur en

$$\text{fréquence} \quad \gamma = \frac{1}{2\pi\tau} = \frac{\bar{v}}{2\pi l} \approx \frac{1360}{2\pi \times 10^{-2}} \approx 216 \text{ KHz}$$

Ceci correspond à peu près à la largeur expérimentale.

Ce même effet de pompage optique Zeeman existe également dans la raie D_1 où il agit parallèlement au pompage optique hyperfin. On pourra donc obtenir de la même façon des signaux de résonance magnétique mais d'amplitude plus faible (voir figure V-1b).

Comme les autres mesures ont été faites sur la raie D_1 (structures hyperfines et déplacements isotopiques) nous avons préféré faire les déterminations de spins nucléaires sur cette même raie D_1 (le laser était accordé sur la composante $F=I+1/2 \longleftrightarrow F'=I+1/2$ et polarisé σ^-).

Les spins nucléaires I ont été mesurés par cette méthode pour les isotopes ^{26}Na à ^{30}Na inclus (Table I). Le spin de l'isotope

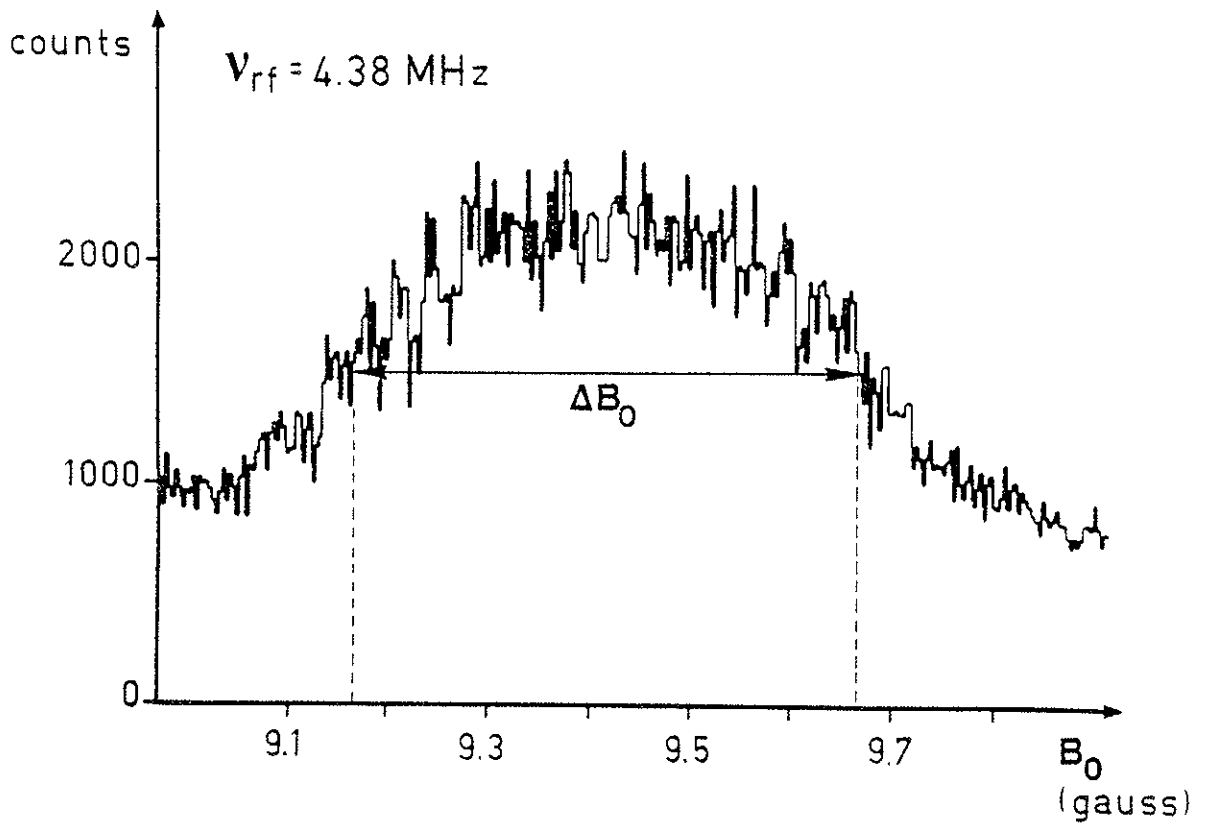


Figure V-2

Signal de résonance magnétique pour l'isotope ^{25}Na .

Le laser est accordé sur la transition $^2S_{1/2}, F=3 \longleftrightarrow ^2P_{3/2}, F'=4$.

^{31}Na n'a pu être mesuré faute de temps. Le choix est limité à $I=3/2$ ou $I=5/2$; la taille de la structure hyperfine, comparable à celles des autres isotopes de spin $I=3/2$ (21, 23, 29) et très inférieure à celles des isotopes de spin $I=5/2$, indique que $I=3/2$ est probablement la valeur correcte. Par ailleurs, le centre de gravité de la structure dépendant de la valeur de I , le déplacement isotopique IS^{31-23} peut prendre deux valeurs : une pour $I=3/2$, une pour $I=5/2$; la valeur obtenue pour $I=3/2$ est en bon accord avec les déplacements isotopiques voisins alors que celle correspondant à $I=5/2$ indiquerait un déplacement isotopique anormalement grand entre les isotopes 30 et 31. Pour cette raison également la valeur $I=3/2$ semble être la plus probable.

| Isotope | ^{26}Na | ^{27}Na | ^{28}Na | ^{29}Na | ^{30}Na |
|---------|------------------|------------------|------------------|------------------|------------------|
| Spin I | 3 | 5/2 | 1 | 3/2 | 2 |

Table I

Détermination des spins nucléaires par résonance magnétique.

C - STRUCTURES HYPERFINES - MOMENTS MAGNETIQUES et
DEPLACEMENTS ISOTOPIQUES.

Les signaux observés simultanément pour deux isotopes radioactifs et l'isotope stable ^{23}Na , comme expliqué au paragraphe V-A, permettent de mesurer les structures hyperfines du niveau fondamental ($^2\text{S}_{1/2}$) et du niveau excité de chaque isotope ainsi que les déplacements isotopiques dès que l'on connaît les spins nucléaires I pour pouvoir calculer la position du centre de gravité de chaque structure.

Les moments magnétiques des isotopes $^{26-31}\text{Na}$ ont été également calculés à partir du facteur A du niveau fondamental $^2\text{S}_{1/2}$ en négligeant les effets d'anomalie hyperfine.

$$\mu_x = \mu_{23} \frac{I_x}{I_{23}} \frac{A_x}{A_{23}}$$

Tous ces résultats sont rassemblés, ainsi que les résultats antérieurs connus, dans le tableau II. Pour chaque isotope, plusieurs spectres ont été enregistrés pour augmenter la précision des mesures.

Des spectres typiques, un pour chaque isotope étudié, sont représentés sur la figure V-3. La position de chacun d'eux dans l'échelle des fréquences est déterminée par rapport à un spectre de sodium ^{25}Na (ou ^{26}Na) et par rapport à un spectre de fluorescence de ^{23}Na .

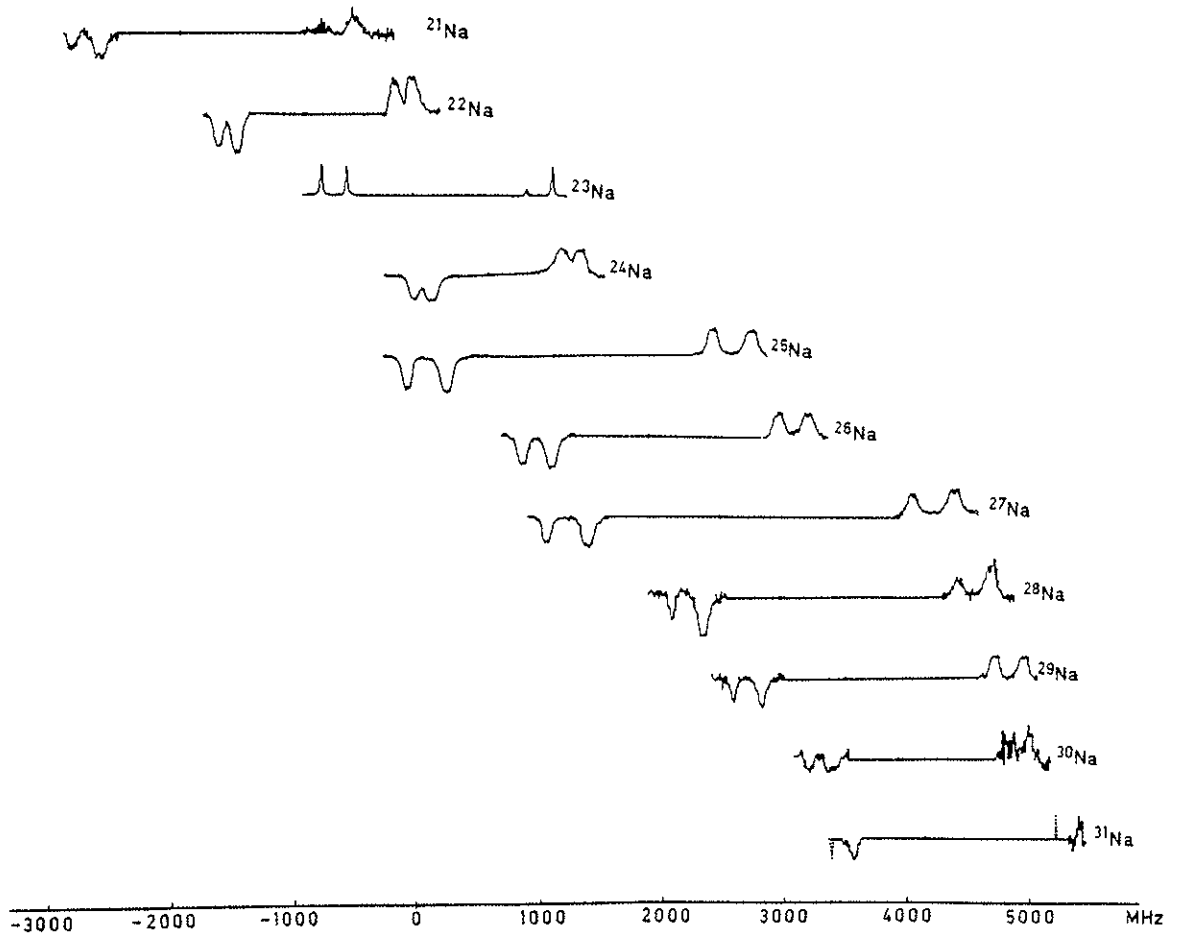


Figure V-3

Structures hyperfines et déplacements isotopiques
des isotopes ^{21}Na à ^{31}Na .

| I_{Na} | $T_{1/2}^a$ | I | $A(^2S_{1/2})$ (MHz) | μ_I (μ_N) corrected | $A(^2P_{1/2})$ (MHz) | $IS^{23,x}$ (MHz) |
|-----------|-------------|---------|---|---|--|------------------------|
| ^{21}Na | 22.5 s | $3/2^b$ | 953.7(2.0) | | 102.6(1.8) | -1596.7(2.3) |
| ^{22}Na | 2.60 y | 3^b | 953.233(11) ^c 349.3(1.0) | 2.38612(10) ^c | 37.5(1.0) | -756.9(1.9) |
| ^{23}Na | stable | $3/2^b$ | 348.75(1) ^d 885.8130644(5) ^f | 1.746(3) ^d 2.2175203(22) ^f | 37.0(1) ^e 34.25(15) ^e | -758.5(7) ^e |
| ^{24}Na | 15.02 h | 4^b | 253.2(2.7) | | 28.2(2.7) | 706.4(6.2) |
| ^{25}Na | 60.0 s | $5/2^b$ | 253.185018(23) ^g 882.7(9) | 1.6902(5) ^g | 94.5(5) | 1347.2(1.3) |
| ^{26}Na | 1.07 s | 3 | 882.8(1.0) ^h | 3.683(4) ^h | 61.0(3) | 1397.5(9) |
| ^{27}Na | 290 ms | $5/2$ | 569.4(3) 933.6(1.1) | 2.851(2) 3.895(5) | 100.2(1.1) | 2481.3(2.0) |
| ^{28}Na | 30.5 ms | 1 | 1453.4(2.9) | 2.426(3) | 156.0(2.7) | 2985.8(2.7) |
| ^{29}Na | 43 ms | $3/2$ | 978.3(3.0) | 2.449(8) | 104.4(3.0) | 3446.2(3.8) |
| ^{30}Na | 53 ms | 2 | 624.0(3.0) | 2.083(10) | 66.2(2.8) | 3883.5(6.0) |
| ^{31}Na | 17 ms | $3/2$ | 912 (15) | 2.283(38) | | 2486 (16) |

^a F. W. Walker, G. J. Kirouac et F. M. Rourke, Chart of the Nuclides, 12th edition, revised to April 77, distributed by Educational Relations, General Electric Company, Schenectady, N. Y. 12345.

^b V. S. Shirley et C. M. Lederer, in Hyperfine Interactions Studied in Nuclear Reactions and Decay, edited by E. Karlsson et R. Wäppling (Almqvist and Wiksell, Stockholm, 1975).

^c O. Ames, E. A. Phillips et S. S. Glickstein, Phys. Rev. 137, B1157 (1965).

^d L. Davis Jr., D. E. Nagle et J. R. Zacharias, Phys. Rev. 76, 1068 (1949).

^e K. Pescht, H. Gerhard et E. Matthias, Z. Phys. A281, 199 (1977).

^f A. Beckmann, K. D. Böklen et D. Elke, Z. Phys. 270, 173 (1974).

^g Y. W. Chan, V. W. Cohen et M. Lipsicas, Phys. Rev. 150, 933 (1966); V. W. Cohen, Bull. Am. Phys. Soc. 18, 727 (1973).

^h M. Deimling, R. Neugart et H. Schweikert, Z. Phys. A273, 15 (1975).

TABLE II : Spins, structures hyperfines, moments magnétiques et déplacements isotopiques des isotopes ^{21}Na - ^{31}Na .
Les erreurs indiquées pour les résultats de notre expérience correspondent à une déviation standard.

D - MISE en EVIDENCE d'un EFFET de VOLUME dans le
DEPLACEMENT ISOTOPIQUE.

Chaque déplacement isotopique indiqué dans le Tableau II est la somme de deux effets ; un déplacement de masse et un déplacement de volume

$$\delta v_{obs}^{AA'} = \delta v_{masse}^{AA'} + \delta v_{vol}^{AA'} .$$

Le premier effet (le déplacement de masse) est lui-même la somme d'un déplacement de masse normal qui peut être calculé exactement et d'un déplacement de masse spécifique qui ne peut pas être calculé de façon précise. Ces deux termes, heureusement, dépendent des masses des isotopes considérés suivant la même loi. On peut donc écrire le déplacement de masse total sous la forme

$$\delta v_{masse}^{AA'} = K \frac{M_{A'} - M_A}{M_A \cdot M_{A'}}$$

$M_{A'}$ et M_A sont les masses des isotopes A et A' en unités de masse atomique, K est une constante mal connue à cause de l'effet de masse spécifique.

Si l'effet de volume est négligeable, le déplacement isotopique total s'écrit :

$$\delta v_{obs}^{AA'} = \delta v_{masse}^{AA'} = K \frac{M_{A'} - M_A}{M_{A'} M_A}$$

et, par conséquent, la quantité

$$\delta v_{obs}^{23, A'} \frac{M_{23} M_{A'}}{M_{A'} - M_{23}} = K \quad \text{doit être constante.}$$

Cette quantité peut être calculée à partir du déplacement isotopique observé du Tableau II pour chaque couple d'isotopes ($^{A'}\text{Na} - ^{23}\text{Na}$).

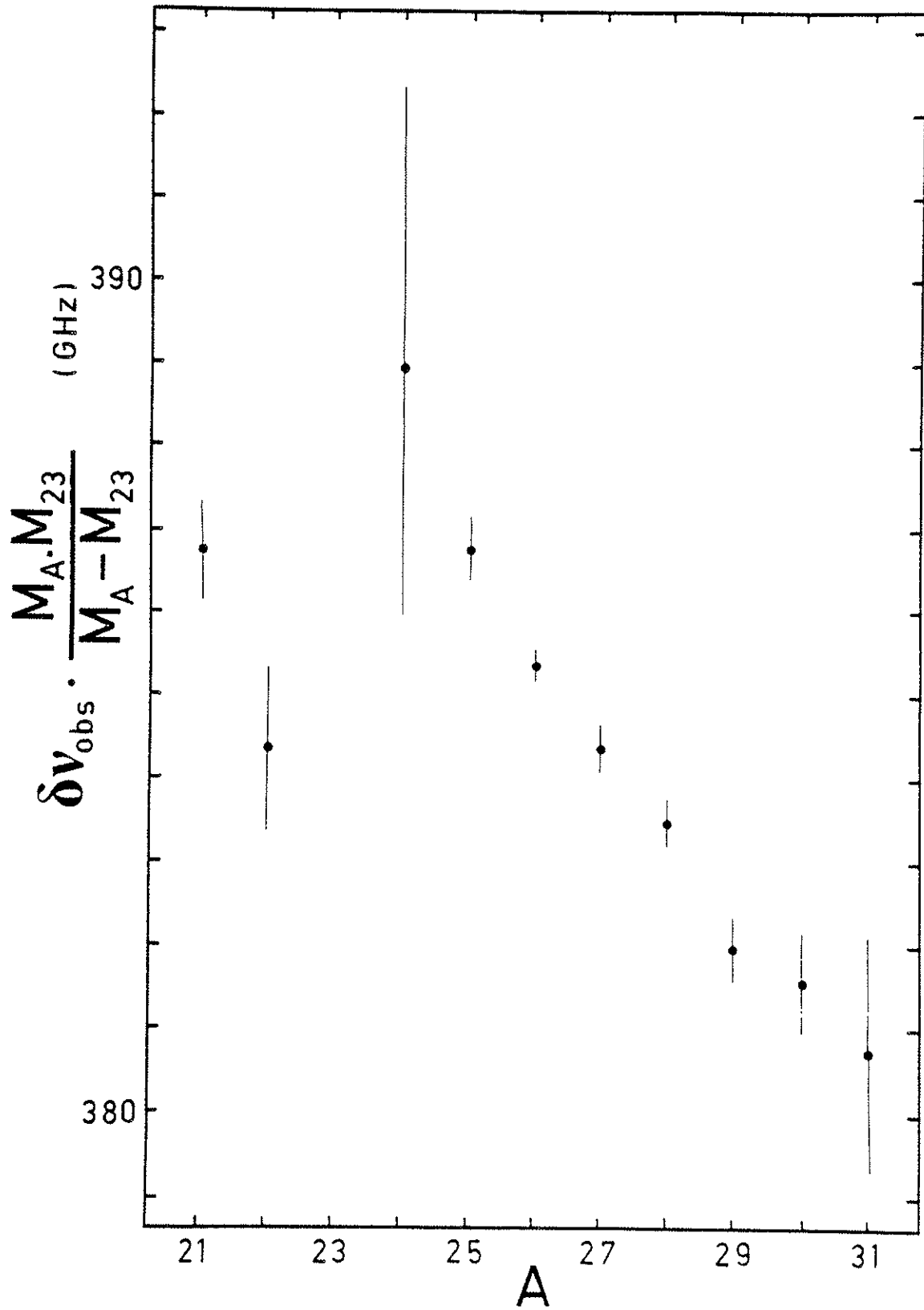


Figure V-4

Mise en évidence d'un effet de volume dans le déplacement isotopique des isotopes de sodium.

Les résultats reportés sur la figure V-4 montrent clairement que cette quantité n'est pas constante, mettant ainsi en évidence l'existence d'un effet de volume non négligeable à la précision de nos mesures.

Une discussion plus approfondie des résultats en ce qui concerne les moments magnétiques et le déplacement isotopique, en particulier la mise en évidence, dans le déplacement isotopique de volume, d'une partie due à la déformation du noyau, se trouve dans la publication donnée en annexe (Annexe VII).

Plus un élément étudié est léger, plus l'effet de masse est prépondérant, l'effet de volume devenant négligeable. Avant notre expérience, l'élément le plus léger pour lequel un effet de volume avait été observé était le calcium [56]. Nous avons pu observer un effet de volume sur un élément aussi léger que le sodium pour deux raisons : d'abord la possibilité de disposer d'un laser de fréquence accordable et contrôlable avec une très grande précision pendant un intervalle de temps très long, ensuite la possibilité d'étudier une longue chaîne d'isotopes exotiques grâce à un appareil pouvant fonctionner même avec des isotopes produits en très petite quantité.

E - MESURES EFFECTUEES sur la RAIE D_2 .
MOMENTS QUADRUPOLAIRES.

L'étude de la raie D_2 permet d'atteindre la structure hyperfine du niveau excité $3^2P_{3/2}$; ce niveau étant un niveau $J=3/2$ la mesure des intervalles de cette structure permet de calculer - par l'intermédiaire de la constante B - le moment quadrupolaire spectroscopique de l'isotope étudié, d'où une deuxième information sur la déformation du

noyau parallèlement à l'information donnée par l'effet de volume dans le déplacement isotopique. Malheureusement, la structure du niveau $^2P_{3/2}$ est plus petite que celle du niveau $^2P_{1/2}$. Dans l'état actuel, la largeur en fréquence des signaux que fournit notre appareil (~80 MHz) est telle que les composantes du niveau $^2P_{3/2}$ sont peu ou pas résolues.

Au cours de la dernière expérience réalisée au C.E.R.N. toutes les mesures ont porté sur la raie D_1 et la raie D_2 n'a pas été étudiée faute de temps.

Dans des expériences précédentes, la raie D_2 de l'isotope ^{25}Na avait été étudiée et la structure du niveau $^2P_{3/2}$ de cet isotope observée.

Ces expériences ont fait l'objet de publications données en annexe (Annexes V et VI). Au prix d'une opération de déconvolution de courbes on peut espérer mesurer le facteur B ; les résultats obtenus dans ces premières expériences ont été contradictoires. Il apparaît cependant que les progrès faits depuis dans la détermination de la fréquence du laser et dans sa stabilité à long terme permettent de recommencer ces expériences avec de bien meilleures chances de succès. Compte tenu de la collimation actuelle du jet et, par conséquent, de l'effet Doppler résiduel, il paraît envisageable de mesurer, sans modification de l'appareil, les structures du niveau $^2P_{3/2}$ des isotopes ^{25}Na et ^{27}Na . Une augmentation de la collimation d'un facteur 2 devrait être suffisante pour étudier d'autres isotopes abondants.

Ces expériences, ainsi que d'autres sur la raie D_1 (isotopes ^{31}Na et ^{32}Na) devraient être réalisées dans un avenir proche (1980).

F - CONCLUSION.

Les résultats obtenus (structures hyperfines et déplacements isotopiques) sur les isotopes radioactifs de sodium ont montré toute l'efficacité de la méthode de sélection magnétique par un seul aimant hexapolaire pour détecter les résonances optiques. Dans le cas présent, cette méthode s'est révélée très efficace. A cause du pompage hyperfin, la détection par fluorescence n'est pas très avantageuse, chaque atome du jet n'émettant en tout qu'un petit nombre de photons d'émission spontanée.

Il a été montré au Chapitre III que toute autre méthode de jet atomique avec 2 aimants devait conduire à des transmissions beaucoup plus faibles, donc nécessiter plus de production de l'isotope à étudier.

Notre méthode, très efficace dans ce cas précis, n'est cependant pas totalement généralisable :

- 1°) Si l'état fondamental est un état $J=0$ elle ne peut pas être utilisée.
- 2°) Si l'état fondamental est un état $J > 1/2$ elle est de moins en moins simple au fur et à mesure que J augmente (l'aimant hexapolaire focalise différemment les états $m_J=J$, $J-1$, etc.. ($m_J > 0$)). On peut estimer qu'elle se limite aux cas $J=1/2$ et $J=1$.
- 3°) Notre méthode nécessite une opération d'ionisation des atomes du jet. Cette opération n'est facile que pour les éléments présentant un faible potentiel d'ionisation [25]. Les processus d'ionisation autres que l'ionisation par fil chaud (ionisation par bombardement électronique par exemple) ont des rendements beaucoup plus faibles.

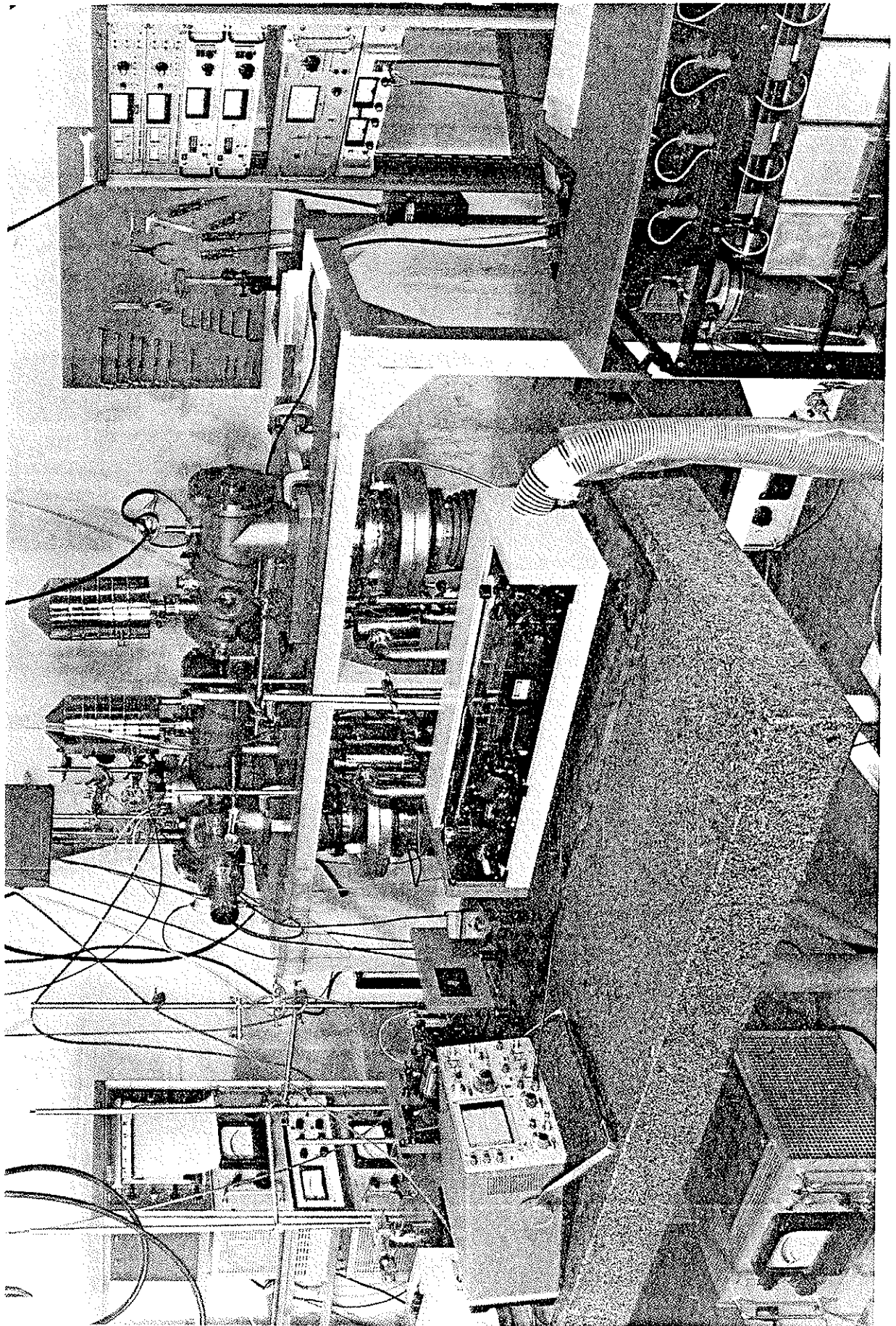
Notre méthode, malgré les limitations indiquées ci-dessus, peut cependant être appliquée à un certain nombre d'éléments, en particulier tous les alcalins. Elle a d'ailleurs été utilisée depuis pour l'étude systématique des isotopes radioactifs de césium, rubidium et francium [57] [58] [8].

De nouvelles expériences, utilisant la même méthode de détection et portant sur les isotopes de sodium et de potassium, sont en cours de réalisation.

Deuxième Partie

PHOTOIONISATION DES NIVEAUX EXCITES DU SODIUM.

Photo ci-contre : L'appareil de jet atomique utilisé dans les expériences de photoionisation. Au premier plan le laser NdYAG et l'oscillateur paramétrique.



I - INTRODUCTION.

Diverses méthodes de détection non optique des résonances optiques (Déviation magnétique [16][Annexes III et IV], déviation par effet de recul des atomes résonnants [Annexe II][14], photoionisation à partir de l'état excité [Annexe VIII] et ionisation par un champ électrique statique [17]) ont été utilisées au Laboratoire Aimé Cotton. Dans le cas des raies de résonance du sodium et, plus généralement, des raies de résonance des alcalins, c'est une méthode du premier type qui s'est révélée la plus efficace (voir Partie I). Cette méthode, cependant, n'est généralisable ni à tous les éléments, comme cela a été dit dans la conclusion de la Partie I, ni à toutes les transitions, en particulier les transitions entre deux états excités. La méthode de photoionisation à partir de l'état excité semble par contre applicable à un beaucoup plus grand nombre de cas.

On se propose d'étudier la transition $A \leftrightarrow B$ (voir figure 1). Pour cela on éclaire les atomes d'un jet atomique simultanément par le rayonnement d'un laser accordable ν_2 pour induire la transition à étudier $A \rightarrow B$ et par le rayonnement d'une autre source (laser ou source classique) dont la fréquence ν_1 est suffisante pour ioniser l'atome depuis le niveau B et trop faible pour l'ioniser à partir du niveau A.

Le niveau A peut être soit l'état fondamental, soit un état excité de l'atome. Dans ce dernier cas, il faut un troisième processus d'excitation pour peupler le niveau A à partir du niveau fondamental F.

Dans ces conditions il n'y a production d'ions que si la fréquence ν_l du laser est accordée sur la transition $A \rightarrow B$.

Les ions sont facilement séparés des atomes neutres et sont détectés soit par mesure du courant d'ions, soit par comptage à l'aide d'un multiplicateur d'électrons. Le rayonnement ionisant n'a pas besoin d'être très monochromatique ni d'avoir une fréquence ν_I très précise puisqu'il excite l'atome vers des états du continuum. Il suffit de

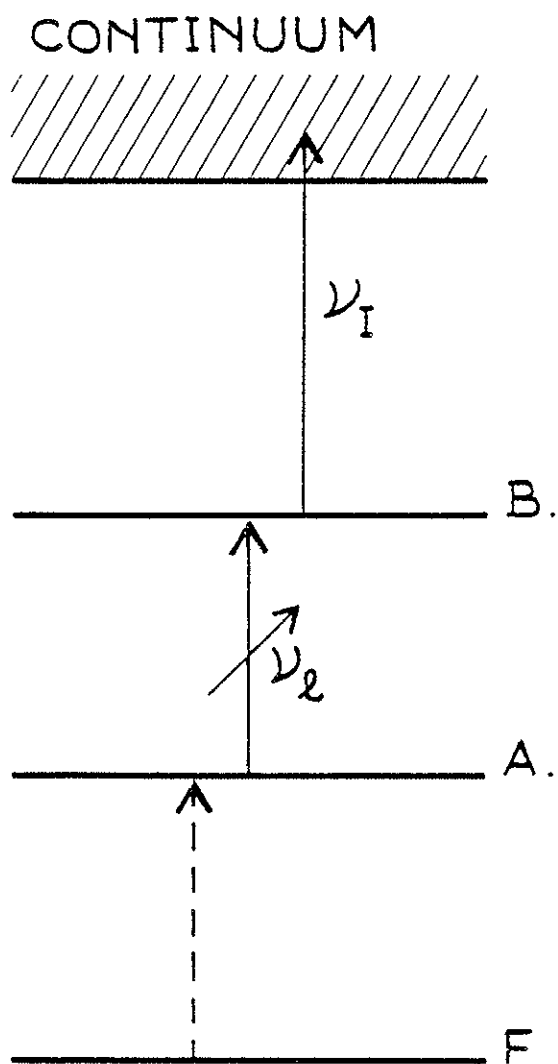


Figure 1

Processus de détection d'une résonance optique ($A \rightarrow B$) par photoionisation à partir du niveau supérieur (B) de la transition. Les niveaux A et F sont éventuellement confondus.

choisir la fréquence ν_I telle que la région du continuum atteinte corresponde à une section efficace de photoionisation aussi grande que possible. La section efficace de photoionisation étant le plus souvent assez faible, il faut par contre un rayonnement ionisant très intense pour photoioniser une proportion non négligeable des atomes portés dans l'état B .

Une expérience utilisant cette méthode de détection a été réalisée au Laboratoire Aimé Cotton sur la raie D_1 du sodium. Le rayonnement de fréquence ν_ρ était fourni par un laser à colorant monomode accordable et le rayonnement ionisant ν_I par une lampe à vapeur de mercure haute pression. Cette expérience est décrite en détail dans la publication donnée en annexe (Annexe VIII) ; elle nous a permis d'observer la structure hyperfine de la raie de résonance D_1 du sodium ^{23}Na mais le rendement de la méthode de détection était faible. Le rapport du nombre d'ions produits au nombre d'atomes du jet interagissant avec la lumière était 10^{-7} environ. Le remplacement de la lampe à vapeur de mercure par un laser à argon ionisé fonctionnant sur une raie ultraviolette n'a pas apporté d'amélioration fondamentale quant au nombre d'ions produits.

Pour cette raison la méthode de détection par photoionisation n'a pas été utilisée dans le cas des isotopes instables du sodium (expérience décrite dans la Partie I).

Dans d'autres cas cette méthode semble prometteuse. Nous l'avons utilisée, pour détecter les niveaux nf du sodium, dans une expérience qui sera décrite à la fin de cette partie (Chapitre V et Annexe X).

Enfin, il faut bien sûr rappeler que cette méthode fait partie des méthodes envisagées pour la séparation isotopique (de l'uranium) par laser [59] .

Le choix de la fréquence ν_I du rayonnement photoionisant dépend de la variation de la section efficace de photoionisation à partir du niveau supérieur de la transition étudiée (niveau B) en fonction de la fréquence ν_I . Pour les alcalins, les sections efficaces de photoionisation à partir de l'état fondamental sont bien connues [60] [61] et présentent un caractère non hydrogénoïde. Les sections efficaces à partir d'états excités sont, elles, beaucoup moins bien connues [62] [63][64]. Une étude théorique systématique a été effectuée par M. AYMAR, E. LUC-KOENIG et F. COMBET-FARNOUX [65] sur les sections efficaces de photoionisation à partir des états excités des alcalins légers. Cette étude a montré que, pour les niveaux ns, le comportement non-hydrogénoïde est qualitativement de même que pour l'état fondamental. Pour les autres niveaux excités ($l \neq 0$) la section efficace de photoionisation $\sigma_{nl}(\epsilon)$ est la somme de deux sections efficaces partielles $\sigma_{nl,l-1}(\epsilon)$ et $\sigma_{nl,l+1}(\epsilon)$ correspondant respectivement aux transitions $\Delta l = -1$ et $\Delta l = +1$ de l'état lié vers le continuum (ϵ est l'énergie du photoélectron, elle est reliée à l'énergie $h\nu_I$ du photon photoionisant par

$$h\nu_I - \epsilon = |\epsilon_{nl}| \quad (1)$$

ϵ_{nl} énergie de liaison de l'état considéré).

Dans certains cas le comportement non hydrogénoïde de l'une ou l'autre de ces sections efficaces partielles est peu visible sur la section totale (somme). Il est donc intéressant de mesurer séparément les deux sections efficaces partielles.

Dans l'expérience qui va être décrite, nous avons étudié pour le niveau excité 3p du sodium ^{23}Na les deux sections efficaces partielles $\sigma_{3p,s}(\epsilon)$ et $\sigma_{3p,d}(\epsilon)$ de photoionisation en fonction de l'énergie ϵ du photo-électron ou, plus exactement, en fonction de la fréquence du photon incident qui lui est relié par la relation (1) (voir également Annexe IX).

II - PRINCIPE de l'EXPERIENCE.

L'expérience qui va être décrite pourrait être réalisée en champ magnétique nul mais, à cause de la présence du champ magnétique terrestre, nous avons effectué l'expérience dans un champ magnétique extérieur de façon que le champ total ait une direction convenable qui sera précisée un peu plus loin.

Supposons qu'il soit possible de placer les atomes de ^{23}Na dans un état du niveau $3p$ de nombre quantique $m_L = +1$ (l'axe de quantification étant défini par la direction du champ magnétique mentionné ci-dessus). Un rayonnement ultraviolet polarisé σ^+ (par rapport au champ \vec{B}) fera passer les atomes de cet état $m_L = +1$ dans un état du continuum pour lequel on aura nécessairement $m_L = +2$, donc un état du continuum d . Par conséquent, la section efficace $\Sigma^+(\epsilon)$ ne dépendra que de $\sigma_{3p,d}(\epsilon)$.

De même, si le rayonnement photoionisant est polarisé σ^- , l'état final dans le continuum sera un état $m_L = 0$ et la section efficace $\Sigma^-(\epsilon)$ sera une combinaison linéaire de $\sigma_{3p,s}(\epsilon)$ et $\sigma_{3p,d}(\epsilon)$.

Les sections efficaces $\Sigma^+(\epsilon)$ et $\Sigma^-(\epsilon)$ se déduisent des fonctions $\sigma_{3p,s}(\epsilon)$ et $\sigma_{3p,d}(\epsilon)$ par

$$\begin{aligned}
 \Sigma^+(\epsilon) &= C \times \begin{pmatrix} 2 & 1 & 1 \\ -2 & 1 & 1 \end{pmatrix}^2 \sigma_{3p,d}(\epsilon) = C \times \frac{1}{5} \sigma_{3p,d}(\epsilon) \\
 \Sigma^-(\epsilon) &= C \times \left[\begin{pmatrix} 2 & 1 & 1 \\ 0 & -1 & 1 \end{pmatrix}^2 \sigma_{3p,d}(\epsilon) + \begin{pmatrix} 0 & 1 & 1 \\ 0 & -1 & 1 \end{pmatrix}^2 \sigma_{3p,s}(\epsilon) \right] \\
 &= C \times \left[\frac{1}{30} \sigma_{3p,d}(\epsilon) + \frac{1}{3} \sigma_{3p,s}(\epsilon) \right]
 \end{aligned} \tag{1}$$

où C est une constante [66].

Or, le pompage optique Zeeman permet d'obtenir des atomes dans le niveau $3p$ ayant tous comme valeur de m_L , $m_L = +1$. Ceci a été décrit en détail et utilisé par WALTHER [67] et par GROVE, WU et EZEKIEL [68] pour obtenir de vrais systèmes à deux niveaux.

Les atomes de sodium d'un jet atomique sont excités à partir du sous-niveau $F=2$ de l'état fondamental vers le sous-niveau hyperfin $F'=3$ de l'état excité $^2P_{3/2}$ par un rayonnement laser de longueur d'onde convenable. Le faisceau laser et le jet atomique ont des directions orthogonales de façon à réduire l'effet Doppler. Les structures hyperfines de l'état fondamental et de l'état excité sont par conséquent résolues (figure 2a). Si la lumière est polarisée σ^+ les processus successifs d'absorption et d'émission spontanée réalisent un pompage Zeeman : toute la population du sous-niveau hyperfin $F=2$ de l'état fondamental se trouve regroupée dans le sous-niveau Zeeman $F=2$, $m_F=2$ de l'état fondamental et, par suite, le rayonnement étant polarisé σ^+ , seul le sous-niveau $F'=3$, $m_{F'}=3$ de l'état excité est peuplé.

Or, pour ce sous niveau, nous savons que

$$m_L = +1 \quad (\text{figure 2b}) .$$

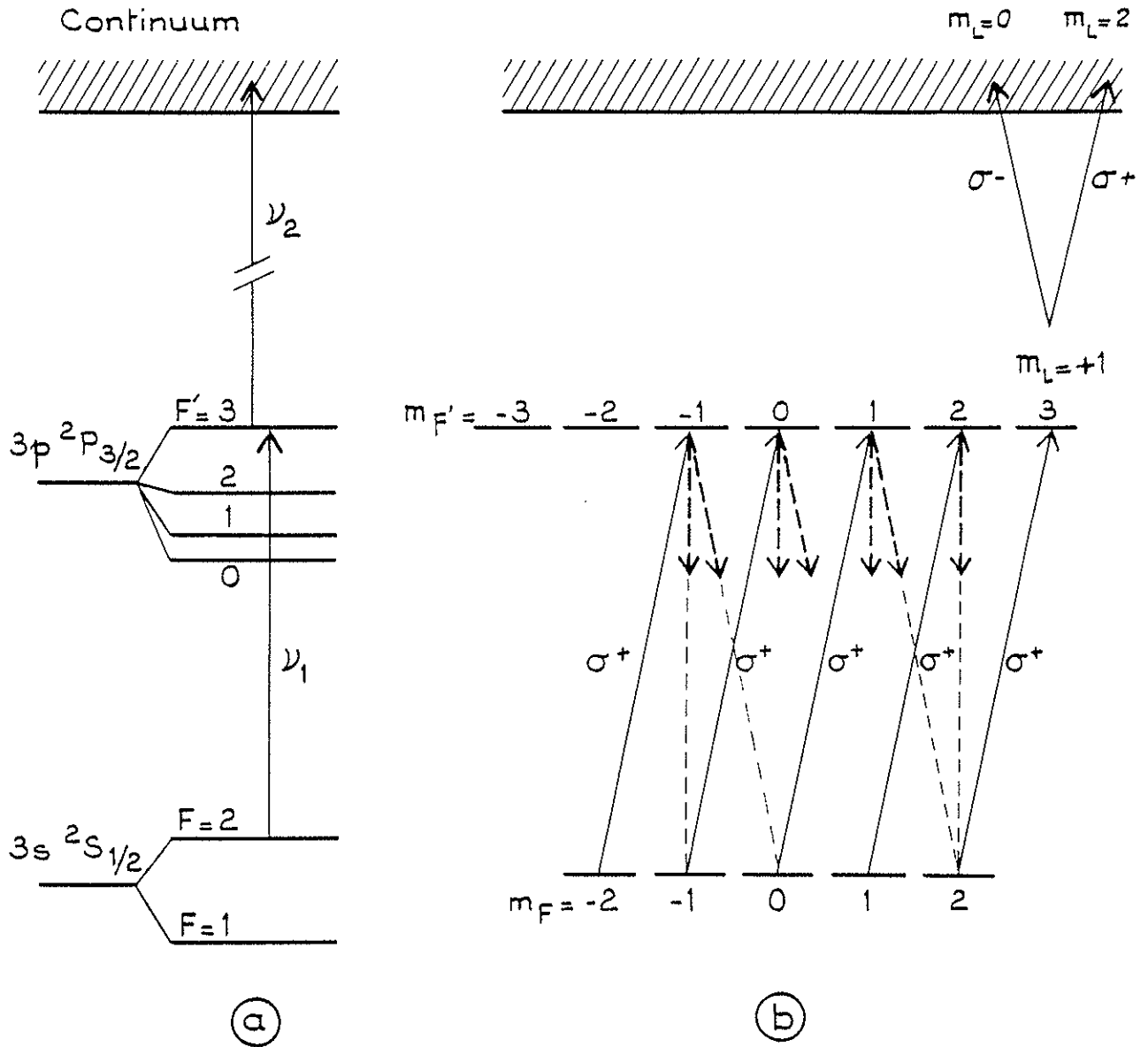


Figure 2

a - Transitions et niveaux atomiques intervenant dans l'expérience.

b - Pompage optique Zeeman.

Dans notre expérience les atomes de sodium d'un jet atomique interagissent avec deux faisceaux laser colinéaires se propageant en sens inverse et perpendiculaires au jet atomique. La zone d'interaction est placée dans un champ magnétique faible parallèle aux faisceaux lumineux qui peuvent, par conséquent, être polarisés soit σ^+ , soit σ^- par rapport à la direction du champ magnétique. Le premier laser, de fréquence ν_1 accordée sur la transition $^2S_{1/2} F=2 \rightarrow ^2P_{3/2} F'=3$ réalise un pompage Zeeman comme expliqué ci-dessus.

Le deuxième faisceau laser, de fréquence ν_2 est colinéaire au premier faisceau et de section droite au niveau du jet atomique beaucoup plus faible ; il est totalement inclus dans le premier de sorte que tous les atomes ont été optiquement "pompés" lorsqu'ils interagissent avec lui. Ce deuxième faisceau, qui est le faisceau ionisant, interagit donc avec des atomes dans un état du niveau $3p$ de nombre quantique $m_L = +1$ comme cela avait été supposé au début du Chapitre II.

En choisissant la polarisation (σ^+ ou σ^-) du rayonnement photo-ionisant nous pouvons mesurer les sections efficaces $\Sigma^+(\epsilon)$ ou $\Sigma^-(\epsilon)$ définies plus haut ou, du moins, des grandeurs proportionnelles à ces sections efficaces.

Soient $N(t_0)$ le nombre d'ions produits pendant le temps t_0 , $n(t_0)$ le nombre de photons U.V. (fréquence ν_2) qui ont traversé le jet atomique pendant le même temps t_0 et I_F le signal de fluorescence du jet atomique sur la raie D_2 (supposé constant pendant l'intervalle de temps t_0), alors la quantité $S = \frac{N(t_0)}{n(t_0)I_F}$ est proportionnelle à la section efficace Σ que l'on cherche à étudier.

Les quantités S_+ (respectivement S_-) obtenues dans notre expérience avec une lumière ultraviolette (ν_2) de polarisation σ^+ (respectivement σ^-) sont proportionnelles aux sections efficaces $\Sigma^+(\epsilon)$ (respectivement $\Sigma^-(\epsilon)$) définies par les équations (1).

On peut donc écrire :

$$\begin{aligned} S_+(\epsilon) &= k \times \frac{1}{5} \sigma_{3p,d}(\epsilon) \\ S_-(\epsilon) &= k \left[\frac{1}{30} \sigma_{3p,d}(\epsilon) + \frac{1}{3} \sigma_{3p,s}(\epsilon) \right] \end{aligned} \quad (2)$$

où k est une constante.

Ce qui peut aussi s'écrire :

$$\begin{aligned} S(\epsilon) &= S_+(\epsilon) + S_-(\epsilon) = \frac{1}{3} k \left[\sigma_{3p,s}(\epsilon) + 0,7 \sigma_{3p,d}(\epsilon) \right] \\ \rho &= \frac{S_+(\epsilon)}{S_-(\epsilon)} = \frac{0,6 \sigma_{3p,d}(\epsilon)}{\sigma_{3p,s}(\epsilon) + 0,1 \sigma_{3p,d}(\epsilon)} \end{aligned} \quad (3)$$

Ce sont ces deux quantités que nous avons mesurées dans le cas du niveau $3p$ du sodium. Les résultats correspondants sont exposés dans le Chapitre IV.

III - LE DISPOSITIF EXPERIMENTAL.

A - Le JET ATOMIQUE.

A-1 - INTRODUCTION.

Cet appareil de jet atomique a été entièrement réalisé et mis au point au Laboratoire Aimé Cotton. Dans un premier temps, il a été utilisé pour faire les expériences de photoionisation décrites ici, puis il a été modifié pour faire des expériences d'ionisation par champ des états de Rydberg dont certaines seront décrites dans la troisième partie (Modification de la région d'interaction).

A-2 - L'ENCEINTE ; LE VIDE.

L'appareil de jet atomique comprend deux parties principales : une chambre four et une chambre d'interaction avec la lumière et de détection du jet atomique. La figure 3 présente un schéma simplifié de cet appareil.

La chambre four et la chambre d'interaction avec la lumière sont reliées par une vanne pendulaire et par un soufflet ; elles sont donc légèrement mobiles l'une par rapport à l'autre. De plus, une chambre intermédiaire peut être éventuellement intercalée entre ces deux chambres.

Pour chaque chambre, le pompage est assuré par un groupe de pompage comprenant une pompe primaire Alcatel type 2012 deux étages $15\text{m}^3/\text{h}$ en série avec une pompe secondaire à diffusion d'huile NRC type VHS-4 de 12001/s munie d'un piège à azote liquide (voir figure 3).

Chaque chambre peut être isolée de son groupe de pompage par une vanne à tiroir (VAT) de grand diamètre d'ouverture. Une vanne électropneumatique permet d'isoler chaque pompe secondaire de sa pompe primaire ; enfin une vanne manuelle et un "by-pass" permettent de court-circuiter la pompe secondaire pour pomper en pompage primaire dans chaque chambre.

Pour chaque chambre, la pression en vide primaire est mesurée par des jauges à thermocouple et la pression en vide secondaire par une jauge à ionisation (NRC 840).

Un système de sécurité permet de couper l'alimentation des pompes et de fermer les vannes électropneumatiques en cas de panne (disjonction de l'alimentation électrique, refroidissement défectueux des pompes secondaires, remontée anormale de la pression dans l'enceinte, etc..). Grâce à ce système l'appareil peut être pompé sans surveillance en toute sécurité.

Des écrans en cuivre, refroidis à l'azote liquide et localisés dans l'enceinte au voisinage du trajet des atomes du jet, permettent d'abaisser encore la pression dans l'enceinte. Deux écrans de ce type ont été utilisés dans notre appareil : un diaphragme au voisinage du four et un double diaphragme entre les fentes F_1 et F_2 . Chacun d'eux est maintenu à basse température par l'azote liquide contenue dans les réservoirs d'azote liquide représentés sur la figure 3. Le fonctionnement d'un système de refroidissement de ce type est représenté sur la figure 4.

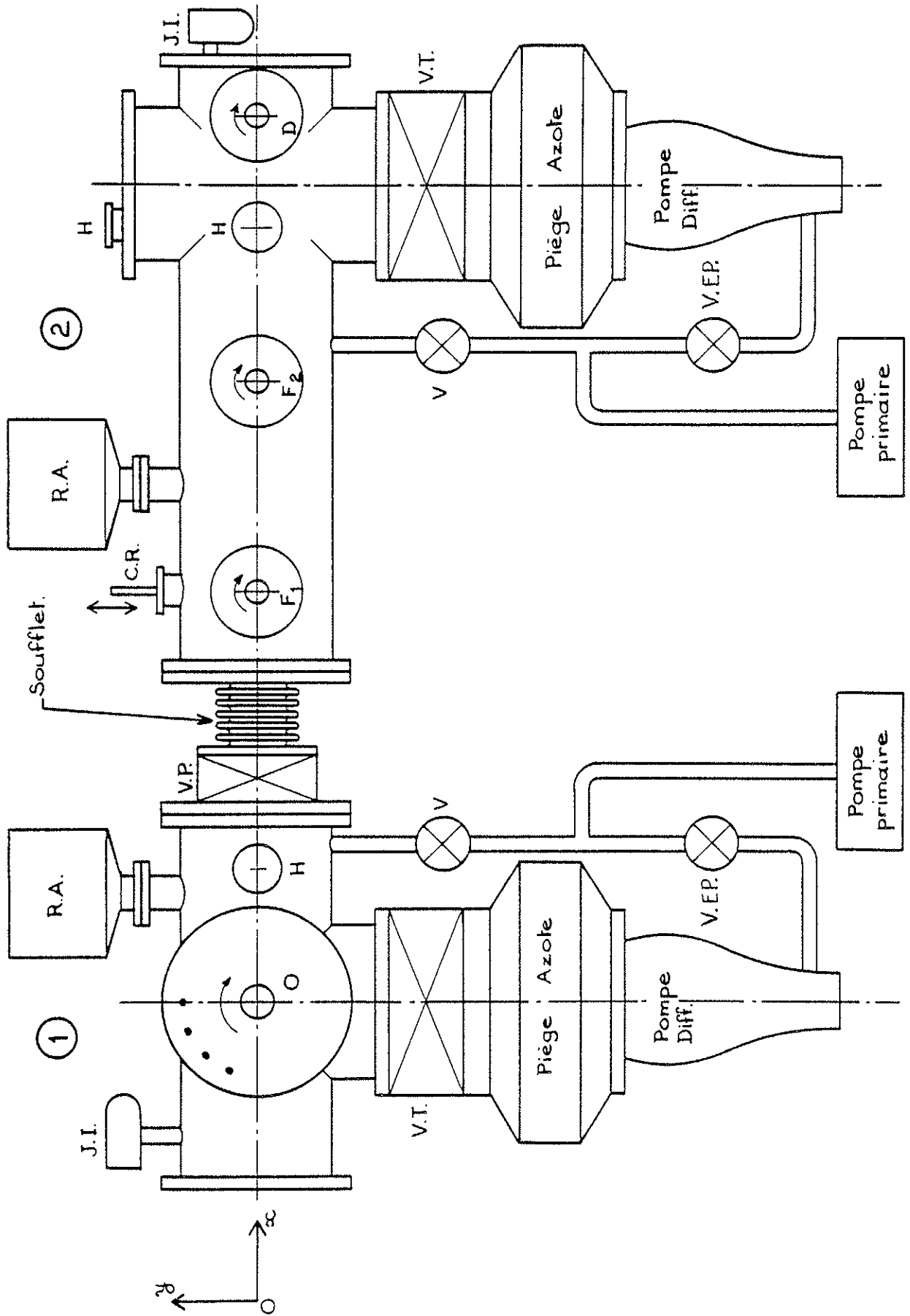


Figure 3

Schéma simplifié de l'appareil.

- 1 Chambre four.
- 2 Chambre d'interaction.
- J. I. Jauge à ionisation
- V. Vanne manuelle
- V. P. Vanne pendulaire
- V. EP. Vanne électropneumatique
- V. T. Vanne à tiroir.
- ⊗ Vanne
- ↻ Commande de translation perpendiculairement au plan de la figure d'un élément du jet (Direction Oz)
- $\left\{ \begin{array}{l} O : \text{Four} \\ F_1 : \text{Fente 1} \\ F_2 : \text{Fente 2} \\ D : \text{Détecteur} \end{array} \right.$
- C. R. Commande de rotation de la fente F_1 autour de Ox
- R. A. Réservoirs d'azote liquide permettant de refroidir des écrans en cuivre à l'intérieur de l'enceinte.
- H. Hublots pour le passage des faisceaux lumineux.

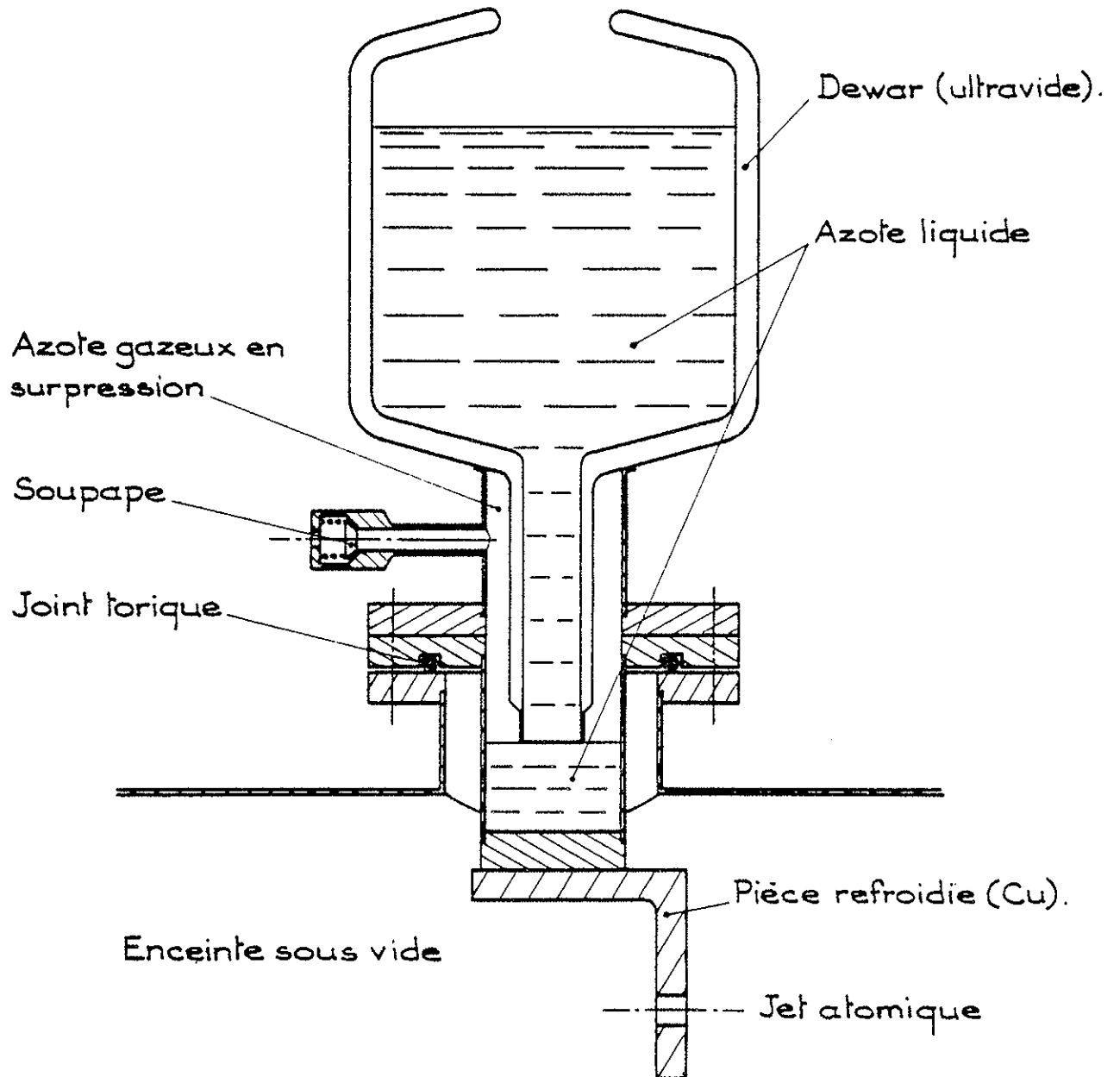


Figure 4

Refroidissement à l'azote liquide d'un diaphragme
dans l'enceinte sous vide (coupe schématique).

Avec les pompes à diffusion et les diaphragmes refroidis à l'azote liquide, la pression dans l'enceinte peut descendre en-dessous de 1×10^{-7} torr dans la chambre four et entre 1 et 2×10^{-7} torr dans la chambre d'interaction, cette pression légèrement plus forte étant probablement due à une très faible fuite que nous ne sommes pas arrivés à localiser.

Les joints utilisés pour assurer l'étanchéité sont des joints Viton secs, non graissés. Toutes les commandes de mouvement (translation ou rotation) des éléments mobiles à l'intérieur de l'enceinte (four, fentes, détecteur) se font par l'intermédiaire de soufflets soudés [69] [70].

A-3 - LE FOUR ; LES FENTES ; LES DIAPHRAGMES FROIDS ; LE DETECTEUR.

Le four que nous avons utilisé a été réalisé d'après les indications que l'on peut trouver dans la littérature [69] [70]. Il est constitué par un bloc de Monel (voir figure 5) dans lequel une cavité cylindrique de plusieurs cm^3 de volume peut recevoir le sodium métallique. L'orifice de remplissage de cette cavité est fermé par un bouchon conique également en Monel. Le four peut être chauffé par des enroulements spiralés de fil de tantale glissés dans des tubes d'alumine creux, eux-mêmes glissés dans des trous cylindriques percés dans la masse du four.

L'orifice de sortie du four par où s'échappe la vapeur de sodium est constitué par une structure de multicanaux ($\phi_{\text{int}} = 0,5 \text{ mm}$) enfoncés à force dans un trou horizontal de section droite $1 \text{ mm} \times 3 \text{ mm}$ qui débouche dans la partie supérieure du réservoir. Deux thermocouples - un situé près de la sortie du four, l'autre près du fond - permettent de contrôler la température. Un système de régulation de température permet de maintenir le four à une température fixe choisie à l'avance.

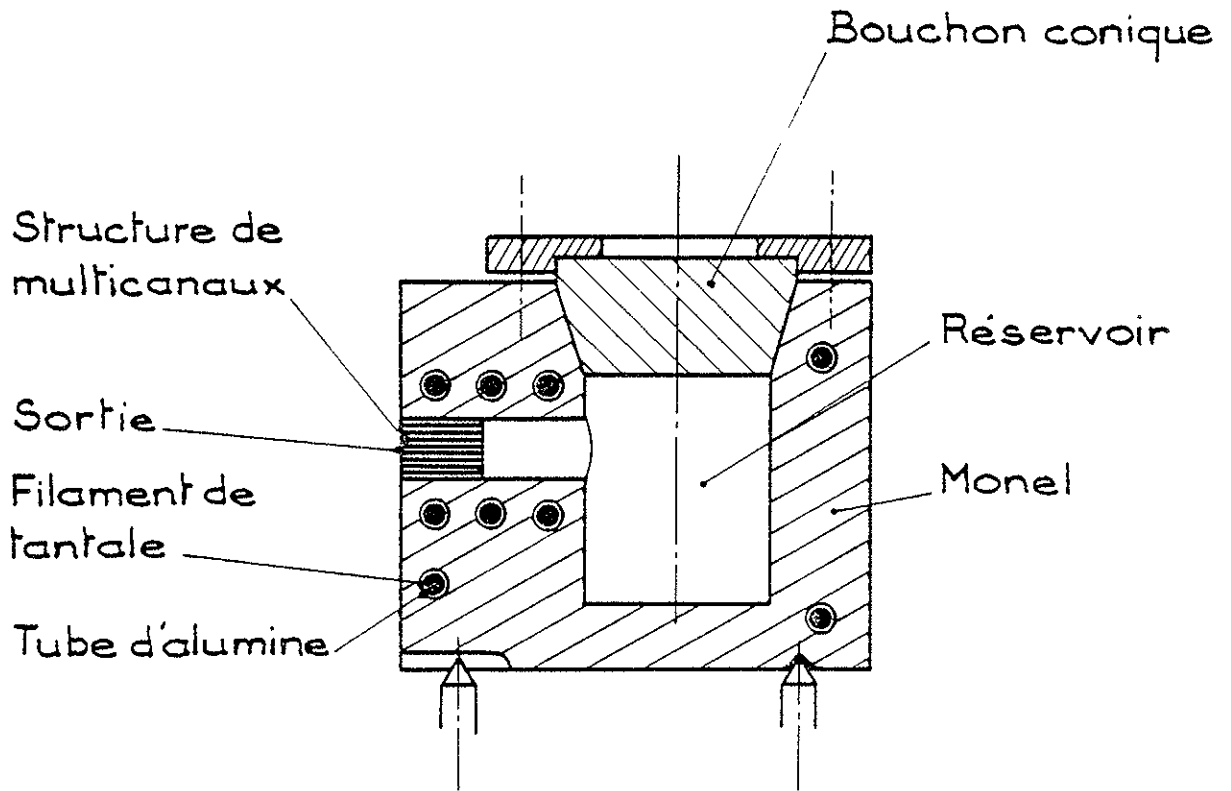


Figure 5 : Four du jet atomique - Vue en coupe.

Nous n'avons pas fonctionné pour les jets de sodium à des températures dépassant beaucoup 300°C (entre 300 et 350°C), mais le four tel qu'il est peut être chauffé jusqu'à 700°C et plus.

Afin d'éviter les pertes par conduction, le four est posé sur sa platine par l'intermédiaire de 3 vis pointeau. L'ensemble (platine + four) peut être déplacé sous vide dans la direction Oz (direction perpendiculaire au plan de la figure 3).

Un écran mobile, placé devant la sortie du four permet de couper éventuellement le jet.

Les éléments qui définissent la géométrie du jet atomique sont représentés sur la figure 6 (les axes Cx,y,z de la figure 6 et de la

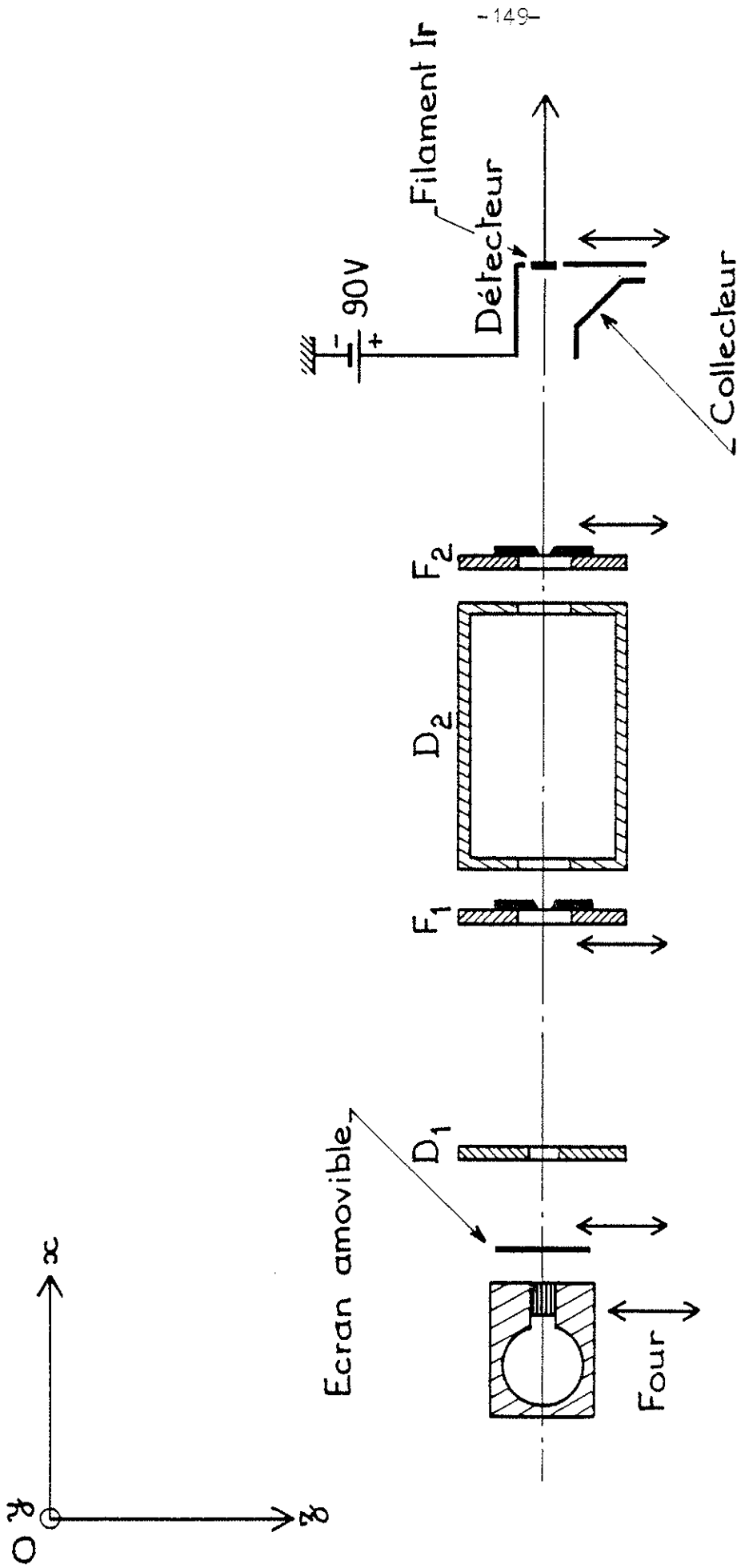


Figure 6

Éléments qui définissent le jet atomique. Les flèches \longleftrightarrow indiquent les mouvements commandables de l'extérieur.

figure 3 se correspondent). Les fentes F_1 et F_2 sont des fentes de largeur fixes, formées par deux lames biseautées vissées sur un même support. La hauteur des fentes est de 1 cm environ et leur largeur peut être préréglée entre 0,1 mm et 5 mm. Chaque fente peut être translaturée globalement sous vide par une commande extérieure dans la direction Oz et la position de la fente peut être repérée par un micromètre (voir fig.6)[69][16]. De plus, la fente F_1 peut également être tournée autour de l'axe Ox par une commande extérieure.

- Les diaphragmes D_1 et D_2 sont fixes ; ils sont en contact thermique avec le fond des réservoirs d'azote liquide de la figure 3. Ces diaphragmes servent à condenser les atomes de sodium qui n'ont pas la direction de vitesse convenable.

- Le jet atomique est détecté par ionisation de surface au contact d'un ruban d'iridium chauffé. On choisit l'iridium car c'est un métal pour lequel le travail d'extraction W ($W = 5,4$ eV) est supérieur au potentiel d'ionisation I des alcalins ($I = 5,36$ V pour Li et $I = 5,12$ V pour Na).

Le ruban d'iridium est un ruban plat d'environ 1,5 mm de large et de quelques centimètres de long. Il est parcouru par un courant de chauffage de quelques ampères de façon que sa partie centrale soit portée au rouge vif. Ce filament est porté à un potentiel de 90 volts par rapport à la masse. Une plaque de cuivre en regard du filament, dont le potentiel est à peu près 0 volt, collecte les ions émis par le filament (voir figure 7). Ce collecteur est relié à l'entrée d'un picoampèremètre sur lequel on peut mesurer le courant d'ions, donc l'intensité du jet atomique. L'ensemble du système de détection (filament + collecteur) peut être globalement translaturé dans la direction Oz (figure 5) par une commande extérieure.

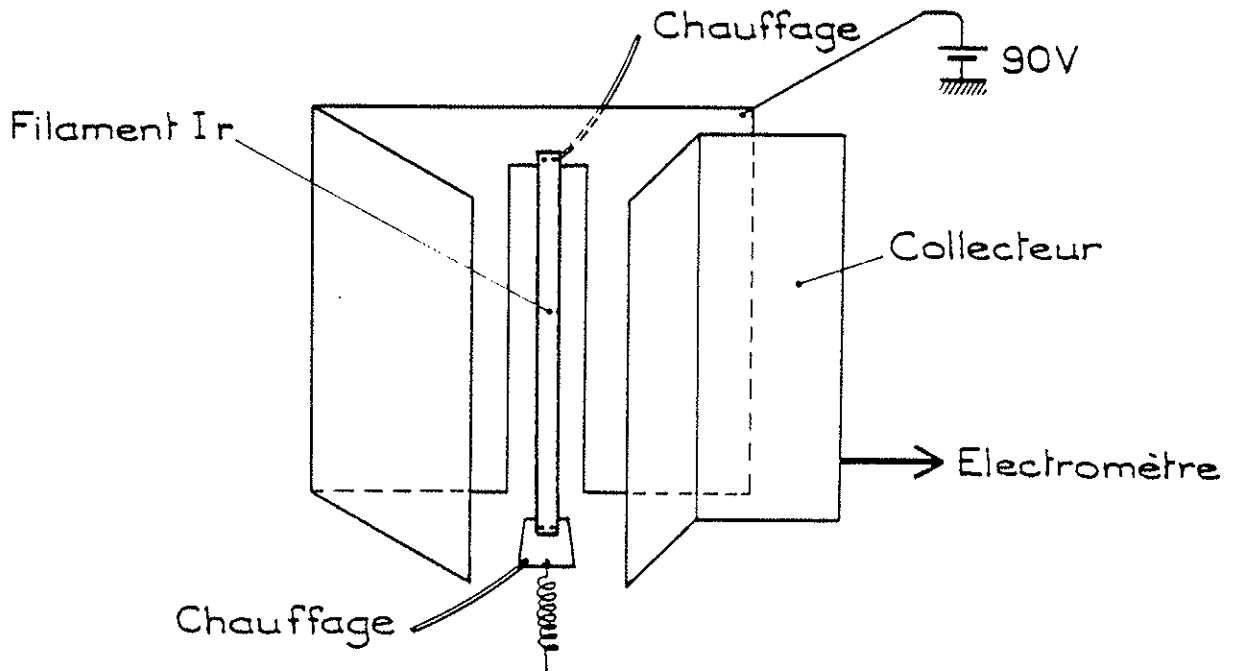


Figure 7

Détection du jet par fil chaud.

A-4 - LA ZONE D'INTERACTION AVEC LA LUMIERE ; LA DETECTION
DES IONS.

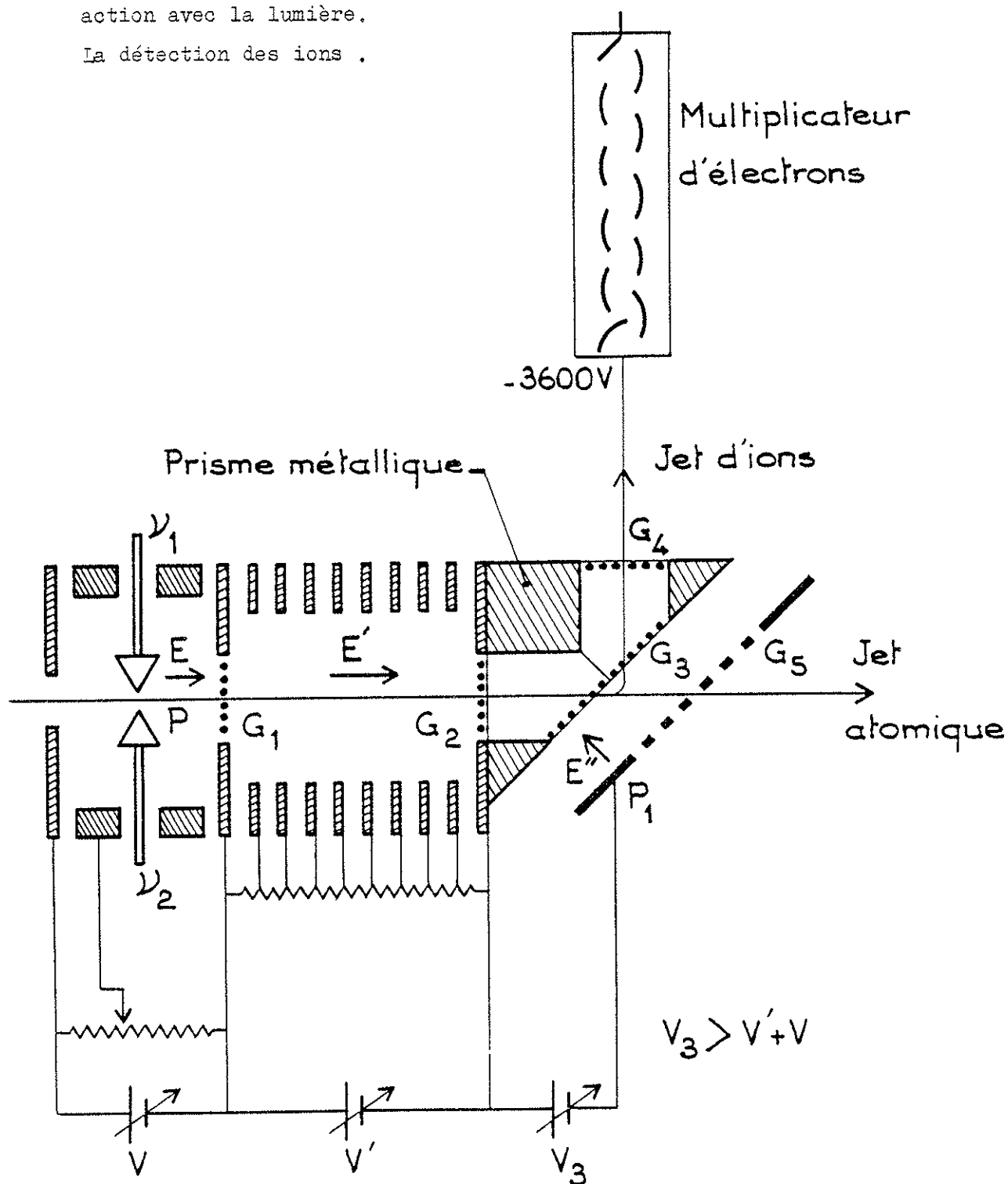
Les atomes du jet atomique interagissent simultanément avec deux faisceaux laser (comme expliqué dans le paragraphe II) en un point P situé au-delà de la fente F_2 .

La zone d'interaction est représentée sur la figure 8.

Les ions créés par photoionisation au point P sont accélérés par un champ électrique \vec{E} d'environ 2 volts/cm et de direction parallèle au jet atomique. Puis, entre les grilles G_1 et G_2 , les ions sont accélérés par un champ \vec{E}' très homogène et de direction toujours

Figure 8

Schéma de la zone d'interaction avec la lumière.
La détection des ions.



parallèle au jet atomique. L'homogénéité du champ \vec{E}' est assurée par un empilement de couronnes circulaires métalliques équidistantes portées à des potentiels électriques en progression arithmétique [71] (voir figure 8). La grille G_2 est mise à la masse. L'amplitude des champs \vec{E} et \vec{E}' peut être réglée de l'extérieur de l'enceinte indépendamment (choix de V et de V'). Les ions pénètrent ensuite dans un prisme creux métallique et sont repoussés par le champ électrique E'' entre la grille G_3 et la plaque P_1 portée au potentiel V_3 . Ce système électrostatique fonctionne comme un prisme à réflexion totale et le faisceau d'ions se trouve dévié de 90° . Ces ions sont collectés par un multiplicateur d'électrons dont la première dynode est portée à un potentiel négatif élevé (-3600 volts). Le gain du multiplicateur, qui dépend de cette tension de polarisation, peut être de 10^7 ou 10^8 . Le multiplicateur fournit en sortie sur 50Ω des impulsions de 5 nanosecondes de durée et d'amplitude de quelques dizaines ou quelques centaines de millivolts. Le signal de sortie est traité numériquement par une échelle de comptage précédée d'un discriminateur à seuil réglable.

B - Les LASERS.

Avant de décrire les différents rayonnements laser mis en jeu dans cette expérience, nous allons rappeler le principe de fonctionnement d'un oscillateur paramétrique optique.

B-1 - PRINCIPE DE FONCTIONNEMENT D'UN OSCILLATEUR PARAMETRIQUE OPTIQUE.

a) Introduction.

Le champ électrique \vec{E} d'une onde électromagnétique induit dans un cristal une polarisation \vec{P} qui peut s'écrire :

$$\frac{\vec{P}}{\epsilon_0} = \chi^{(1)} \otimes \vec{E} + \chi^{(2)} \otimes \vec{E} \otimes \vec{E} + \chi^{(3)} \otimes \vec{E} \otimes \vec{E} \otimes \vec{E} + \dots$$

(ϵ_0 permittivité du vide ; $\chi^{(n)}$ susceptibilité d'ordre n).

Si le champ \vec{E} est faible, seul le premier terme est important, les autres étant négligeables. Si, par contre, il est fort, les termes d'ordre supérieur jouent un rôle et on observe des effets non linéaires.

Plus précisément, supposons que le cristal considéré soit soumis à un champ électromagnétique intense de fréquence ν_p (champ pompe) et à un champ plus faible (champ signal) de fréquence ν_s . Dans le terme du deuxième ordre de la polarisation ($\chi^{(2)} \otimes \vec{E} \otimes \vec{E}$) apparaît une composante oscillant à la fréquence $\nu_I = \nu_p - \nu_s$. Cette polarisation oscillante engendre une onde électromagnétique de fréquence ν_I (champ "idler") qui se couple à son tour avec le champ-pompe par l'intermédiaire du terme du second ordre de la polarisation du cristal. Il apparaît une composante oscillant à la fréquence $\nu_s = \nu_p - \nu_I$ dans le terme du second ordre de la polarisation. Le champ rayonné par cette composante de la polarisation, vient s'ajouter vectoriellement à l'onde-signal initiale, et donc la renforcer éventuellement s'il y a accord de phase entre ces deux ondes. Cet accord de phase se traduit par la relation $\Delta k = k_p - (k_s + k_i) = 0$ ($k_j = \frac{2\pi n_j \nu_j}{c}$, n_j indice de réfraction correspondant à l'onde de fréquence ν_j ; c étant la vitesse de la lumière dans le vide). Cette condition d'accord de phase (en anglais "phase matching") n'a pas besoin d'être rigoureusement

satisfaite pour avoir amplification. Il suffit d'avoir $\Delta k \approx 0$ (voir paragraphe suivant).

D'autre part, pour observer ce phénomène d'amplification, il faut choisir judicieusement le cristal et les directions de polarisation des champs électriques. En particulier, tous les cristaux qui présentent un centre de symétrie ne conviennent pas puisque pour eux $\chi^{(2)}$ est identiquement nul.

De plus, un cristal isotrope ne peut pas convenir car, du fait de la dispersion, les deux relations $\omega_p = \omega_s + \omega_I$ ($\omega_j = 2\pi\nu_j$) (1)

$$\text{et} \quad k_p = k_s + k_I \quad (2)$$

ne peuvent être simultanément satisfaites. Il faut donc utiliser un cristal anisotrope pour pouvoir tirer partie de la biréfringence afin de satisfaire simultanément (1) et (2).

b) Amplification paramétrique.

Le calcul complet de l'amplification se trouve dans la référence [72]. On ne rappelle ici que les hypothèses du calcul et les résultats :

- On considère l'interaction de trois ondes planes de pulsations ω_p , ω_s et ω_I dans un cristal de LiIO_3 . Les trois pulsations vérifient la relation $\omega_p = \omega_s + \omega_I$, k_p , k_s , k_I sont les vecteurs d'onde des trois ondes dans le cristal.

- L'onde-pompe de pulsation ω_p est une onde intense dont on suppose que l'amplitude E_p ne varie pas au cours de la traversée du cristal.

- Les trois ondes planes sont couplées entre elles par le terme du deuxième ordre de la polarisation du cristal χ_{yxy} .

Moyennant ces hypothèses on trouve, à partir de l'équation d'onde, que les amplitudes $E_s(z)$ et $E_i(z)$ des deux autres ondes (onde signal et onde "idler") obéissent aux deux équations différentielles :

$$\left\{ \begin{array}{l} \frac{d^2 E_s}{dz^2} - i \Delta k \frac{d E_s}{dz} - \gamma^2 E_s = 0 \end{array} \right. \quad (3)$$

$$\left\{ \begin{array}{l} \frac{d^2 E_i^*}{dz^2} + i \Delta k \frac{d E_i^*}{dz} - \gamma^2 E_i^* = 0 \end{array} \right. \quad (4)$$

avec $\Delta k = k_p - k_i - k_s$ et $\gamma^2 = \frac{4\pi^2 \omega_i \omega_s \chi_{yxy}^2}{c^2 n_i n_s} E_p E_p^*$.

Les solutions des équations (3) et (4) sont de la forme $A_1 e^{\alpha_1 z} + A_2 e^{\alpha_2 z}$ où α_1 et α_2 sont les racines de l'équation caractéristique

$$\alpha^2 - i \Delta k \alpha - \gamma^2 = 0 \quad (5)$$

$$\alpha_{1,2} = \frac{i \Delta k \pm \sqrt{-(\Delta k)^2 + 4\gamma^2}}{2}$$

Pour avoir amplification il faut que les racines aient une partie réelle

donc $\gamma^2 > \left(\frac{\Delta k}{2}\right)^2$.

La condition d'accord de phase peut alors s'écrire plus précisément :

$$|\Delta k| < 2\gamma \quad (\text{au lieu de } \Delta k \simeq 0).$$

Le gain maximum de l'amplification s'obtient pour $\Delta k = 0$.

c) Oscillateur paramétrique.

En plaçant le cristal amplificateur décrit précédemment dans un résonateur optique, on obtient un oscillateur paramétrique à la condition que le gain de l'amplification du cristal soit supérieur aux pertes de la cavité. Le système, excité par une onde suffisamment intense de fréquence ν_p et de vecteur d'onde dans le cristal k_p , fournit en sortie, en plus de l'onde pompe incidente atténuée, deux ondes (onde

source et onde "idler" dont les fréquences et les vecteurs d'ondes dans le cristal vérifient les deux relations

$$\nu_s + \nu_I = \nu_p \quad (6)$$

et

$$k_s + k_i \approx k_p \quad (7)$$

L'équation (7) peut aussi s'écrire

$$n_s \nu_s + n_i \nu_i \approx n_p \nu_p \quad (8)$$

où n_s , n_i , n_p sont les indices de réfraction du cristal correspondant aux ondes ν_s , ν_I , ν_p .

Le couple de fréquences (ν_s , ν_I) solution des équations (6) et (8) dépend de certains paramètres du cristal, par exemple la température ou l'orientation. En faisant varier un de ces paramètres (température du cristal par exemple, voir figure 10) on fait varier simultanément les fréquences ν_s et ν_I des rayonnements monochromatiques fournis par l'oscillateur. On dispose ainsi de deux rayonnements monochromatiques accordables. Par ailleurs, en changeant la fréquence ν_p de l'onde pompe, on peut changer le domaine de balayage des fréquences de sortie ν_s et ν_p (voir figure 10).

On peut distinguer deux sortes d'oscillateurs paramétriques selon que le résonateur optique est résonnant pour une seule des ondes ν_s ou ν_I (oscillateurs monorésonnants) ou pour les deux ondes ν_I et ν_s à la fois (oscillateurs birésonnants). Ces derniers oscillent plus facilement mais sont moins stables et moins facilement balayables que les oscillateurs monorésonnants (voir réf. [72]).

B-2 - LES LASERS UTILISES.

Deux rayonnements laser sont utilisés pour photoioniser les atomes de sodium via le niveau de résonance $3p \ ^2P_{3/2} \ F'=3$ (voir figure 2, Chapitre II).

- Le rayonnement de fréquence ν_1 , accordée sur la transition ($3s \ ^2S_{1/2} \ F=2 \ \longleftrightarrow \ 3p \ ^2P_{3/2} \ F'=3$) est fourni par un laser à colorant continu monomode Spectra Physics 580.

- Le rayonnement photoionisant (fréquence ν_2) doit permettre de porter les atomes dans le continuum, son nombre d'ondes doit donc être supérieur à 24476 cm^{-1} qui est la limite d'ionisation à partir du niveau $3p$.

Pour étudier les variations de la section efficace de photoionisation avec la fréquence, il faut pouvoir balayer cette fréquence ν_2 sur la plus grande plage possible au-delà de 24476 cm^{-1} .

Le système utilisé dans cette expérience a permis de balayer la fréquence d'un rayonnement pulsé monochromatique dans la plage de nombres d'ondes [$24000 \text{ cm}^{-1} - 29000 \text{ cm}^{-1}$]. Ce système comprend un laser pulsé NdYAG (Chromatix Model 1000) qui permet de pomper un oscillateur paramétrique optique (Chromatix Model 1020). Cet oscillateur fournit un rayonnement monochromatique accordable qui, par doublage de fréquence dans un cristal, fournit le rayonnement ultra-violet accordable désiré.

a) Le laser pompe.

Le laser NdYAG peut fonctionner en impulsions sur 13 fréquences infrarouges et, grâce à un cristal doubleur situé dans la cavité laser, sur les 13 fréquences doubles (rayonnements visibles). Le pompage de l'oscillateur paramétrique peut se faire avec l'une des trois raies $\lambda_p = 0,532 \ \mu\text{m}$, $\lambda_p = 0,562 \ \mu\text{m}$ ou $\lambda_p = 0,659 \ \mu\text{m}$ du laser NdYAG.

b) L'oscillateur paramétrique optique.

L'oscillateur paramétrique optique Chromatix modèle 1020 fonctionne suivant le principe qui a été exposé au début de ce paragraphe. Le cristal amplificateur est un cristal de Niobate de Lithium (LiNbO_3). Il est placé dans un four électrique muni d'une régulation de température, ce qui permet de contrôler et de fixer à une valeur pré-réglée la température du cristal.

L'ensemble se trouve dans un résonnateur optique (voir figure 9).

On peut remarquer sur la figure 9 que les ondes signal et "idler" sont polarisées dans une direction perpendiculaire à la direction de polarisation du faisceau pompe ν_p . La biréfringence du cristal de LiNbO_3 peut alors compenser l'effet de la dispersion et il existe un couple de fréquences (ν_s, ν_I) qui vérifie les équations (6) et (3)

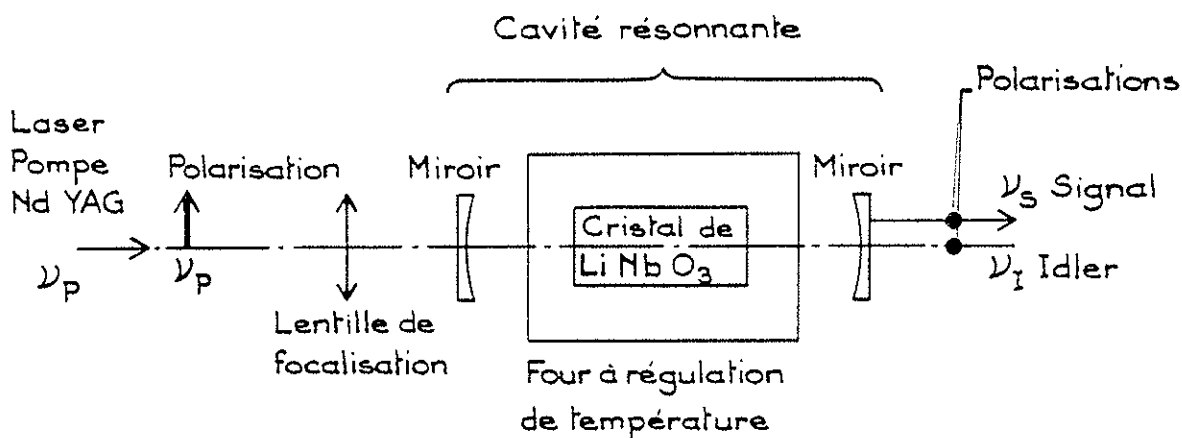


Figure 9

Schéma de l'oscillateur paramétrique (Chromatix Modèle 1020)

du paragraphe B-1-c . En choisissant convenablement la longueur d'onde du faisceau pompe et les miroirs de la cavité de l'oscillateur on peut, en jouant sur la température du cristal, obtenir en sortie de l'oscillateur un rayonnement monochromatique de n'importe quelle longueur d'onde comprise entre $0,65 \mu\text{m}$ et $3,0 \mu\text{m}$ (voir figure 10).

En utilisant successivement comme rayonnement de pompage la raie $\lambda_p = 0,562 \mu\text{m}$ puis la raie $\lambda_p = 0,532 \mu\text{m}$ on peut obtenir en sortie de l'oscillateur paramétrique un rayonnement monochromatique λ_s accordable sur toute la plage $[0,85 \mu\text{m} - 0,65 \mu\text{m}]$, ce qui correspond, en nombres d'ondes à la plage $[11760 \text{ cm}^{-1} - 15380 \text{ cm}^{-1}]$.

c) Le doublage de fréquence.

Le rayonnement de longueur d'onde λ_s fourni par l'oscillateur paramétrique est ensuite focalisé dans un cristal d'iodate de lithium (LiIO_3) . Du fait des propriétés électriques non-linéaires de ce cristal il y a production d'une onde de fréquence ν_{uv} double de la fréquence ν_s de l'onde incidente ($\nu_{uv} = 2\nu_s$) . Cette production n'est importante que si la relation d'accord de phase $k_{uv} = 2k_s$ est également vérifiée (k_j vecteur d'onde de l'onde j) . On satisfait à cette condition d'accord de phase en tournant le cristal doubleur d'un angle convenable [73].

Compte tenu de la plage balayable par le rayonnement de longueur d'onde λ_s indiquée dans le paragraphe précédent (2b) le doublage de fréquence doit permettre de couvrir continuellement la plage de nombre d'ondes $[23520 \text{ cm}^{-1} - 30760 \text{ cm}^{-1}]$. Comme on cherche à photoioniser les atomes on se limitera vers les faibles nombres d'ondes à 24476 cm^{-1} (limite d'ionisation).

Vers les nombres d'ondes élevés, le doublage de fréquence ne peut guère fonctionner au-delà de 29000 cm^{-1} (pour l'U.V.), la rotation nécessaire pour réaliser la condition d'accord de phase devenant trop importante.

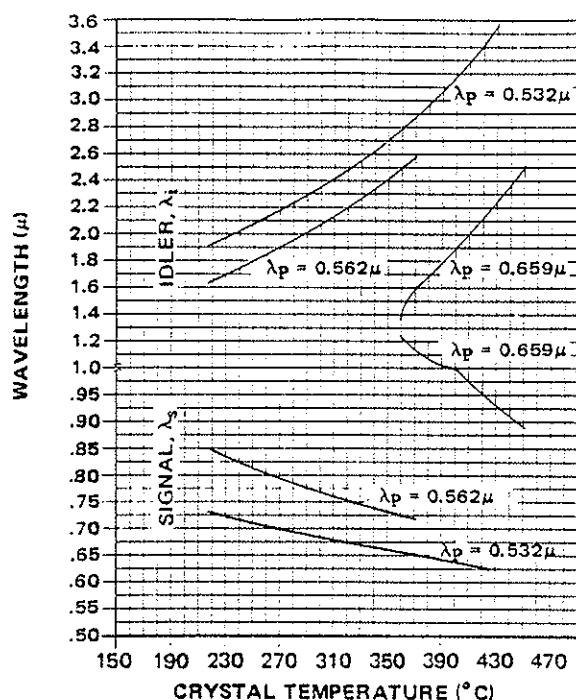


Figure 10

| Tuning Range (μ) | Range (cm ⁻¹) | Nominal Pulse Length Half Amplitude (ns) | Bandwidth (cm ⁻¹) | Oscillator Mirrors | | Laser Pump Wavelength (μ) |
|---------------------|------------------------------|---|----------------------------------|-----------------------|--------|---------------------------------|
| | | | | Input | Output | |
| 0.85 - 0.76 | 11760 - 13160 | 250 | 1 | P - 4 | P - 4T | 0.562 |
| 0.76 - 0.72 | 13160 - 13890 | 250 | 1 | P - 13 | P - 13 | 0.562 |
| 0.73 - 0.70 | 13700 - 14290 | 70 | 1 | P - 4 | P - 4T | 0.532 |

Longueurs d'onde de sortie λ_s (signal) et λ_I (Idler) de l'oscillateur paramétrique en fonction de la température et de la longueur d'onde du faisceau pompe. Les plages de fréquence balayées dans cette expérience sont indiquées dans le tableau.

(Renseignements extraits de la Notice fournie par le Constructeur : Chromatix oscillateur optique paramétrique Modèle 1020).

La plage de nombres d'ondes que l'on peut balayer avec ce système pour le rayonnement U.V. photoionisant est donc $[24476 \text{ cm}^{-1} - 29000 \text{ cm}^{-1}]$.

d) Caractéristiques du rayonnement U.V. photoionisant.

Les impulsions ultraviolettes obtenues ont les caractéristiques suivantes :

- Durée de l'impulsion 100 ns environ.
- Fréquence de répétition 50 Hz maximum.
- Puissance crête : quelques dizaines de Watts.
Cette quantité est extrêmement variable d'une impulsion à l'autre car ce rayonnement est obtenu au moyen de plusieurs processus optiques non-linéaires successifs.
- Domaine de balayage utilisé $[24476 \text{ cm}^{-1} - 29000 \text{ cm}^{-1}]$.

C - Le MONTAGE EXPERIMENTAL.

L'ensemble du montage expérimental est représenté sur la fig. 11.

On reconnaît le jet atomique dont il a été question au §.III-A et les deux lasers (laser à colorant de fréquence ν_1 et laser pulsé de fréquence ν_2) dont il a été question au §.III-B .

Le jet atomique interagit avec les deux faisceaux lumineux au point P . Son épaisseur au niveau de la zone d'interaction est

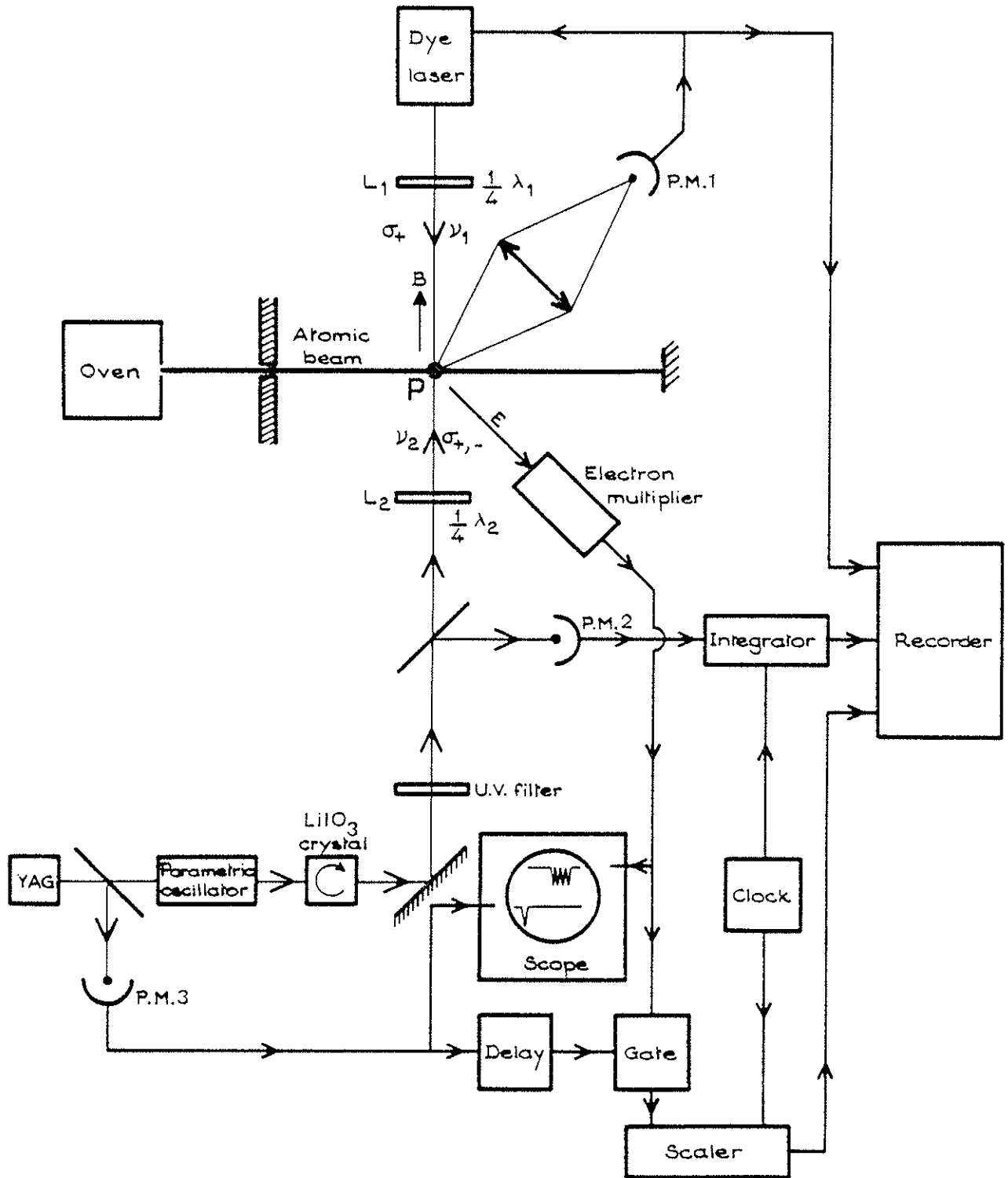


Figure 11

Schéma général du montage expérimental.

d'environ 5 mm et la densité d'atomes dans le jet à cet endroit est d'environ 10^7 atomes/cm⁻³. Les deux faisceaux laser qui se propagent en sens opposé sont colinéaires et perpendiculaires au jet atomique. Deux bobines de Helmholtz (non représentées sur la figure) produisent un champ magnétique \vec{B} de quelques Gauss de direction parallèle aux faisceaux lumineux. Le rayonnement laser de fréquence ν_1 accordée sur la transition $3^2S_{1/2} F=2 \rightarrow 3^2P_{3/2} F'=3$ est polarisé circulairement par une lame quart d'onde L_1 . Le signal de fluorescence du jet atomique, détecté par un photomultiplicateur (PM_1), permet d'asservir la fréquence du laser à la fréquence de la transition atomique. L'amplitude de ce signal permet également de contrôler les variations de la population de l'état excité intermédiaire ($3^2P_{3/2}$).

Le faisceau U.V. (ν_2) est filtré et focalisé sur le jet atomique à l'intérieur d'un spot entièrement compris dans la section droite du faisceau laser jaune (ν_1) de telle sorte que les atomes du jet dans le niveau $2P_{3/2}$ qui interagissent avec le rayonnement U.V. sont tous déjà dans le sous-niveau Zeeman $F'=3$, $m_{F'}=3$ (voir le Chapitre II, Principe de l'expérience).

Le faisceau U.V. qui est polarisé linéairement à la sortie du cristal de $LiIO_3$ est ensuite polarisé circulairement soit σ^+ , soit σ^- , par une lame quart d'onde L_2 . Cette lame quart d'onde est, en fait, rigoureusement quart d'onde pour $\lambda = 3800 \text{ \AA}$, c'est-à-dire pour une valeur de λ correspondant grossièrement au centre de la plage de balayage.

Une faible partie de la lumière ultra violette est envoyée sur un photomultiplicateur (PM_2) dont le signal de sortie est intégré pendant la durée de chaque mesure. Si l'on connaît la courbe de réponse spectrale de la photocathode, on peut mesurer une grandeur proportionnelle au nombre de photons U.V. envoyés sur le jet atomique pendant la durée d'une mesure.

Les ions de sodium créés par photoionisation sont accélérés et défléchis par les champs électriques du système de détection décrit dans le paragraphe III-A et détectés par le multiplicateur d'électrons. Les impulsions fournies par celui-ci sont observées sur un oscilloscope déclenché par l'impulsion lumineuse du laser NdYAG par l'intermédiaire du photomultiplicateur PM_3 .

On peut ainsi mesurer le temps de transit et la dispersion des ions créés par photoionisation. Ceci permet d'ajuster le retard et la durée d'une porte électronique du système de comptage et, par conséquent, d'améliorer le rapport signal sur bruit en ne comptant les ions que pendant le temps utile.

Pour chaque mesure, on compte les ions pendant un intervalle de temps accordable (typiquement 30 secondes) fixé par une horloge externe.

Cette même horloge permet d'intégrer le signal du photomultiplicateur PM_2 pendant le même intervalle de temps.

IV - MESURES ET RESULTATS.

A - MESURES.

Pour chaque point de mesure on enregistre le signal I_f de fluorescence du jet sur la raie D_2 , qui reste constant pendant tout le temps t_0 de la mesure ainsi que la valeur $q(t_0)$ du signal délivré par l'intégrateur (situé après le photomultiplicateur PM_2) au bout du temps t_0 .

Si s est la sensibilité spectrale du photomultiplicateur (donnée par le constructeur : 1P28-Couche S_5 -Fenêtre Quartz) et ν_2 la fréquence du rayonnement photoionisant, la quantité $\frac{q(t_0)}{s\nu_2}$ est proportionnelle au nombre $n(t_0)$ de photons U.V. envoyés sur le jet pendant le temps t_0 .

On enregistre simultanément le nombre d'ions $N(t_0)$ créés par photoionisation et détectés par le multiplicateur d'ions pendant le même temps t_0 .

Pour chaque fréquence U.V. les mesures sont répétées plusieurs fois pour chacune des polarisations σ^+ et σ^- possibles pour le rayonnement photoionisant. Les signaux enregistrés permettent de calculer les quantités $S_+(\epsilon)$ et $S_-(\epsilon)$ qui ont été définies dans le

Chapitre II ainsi que leur somme $S(\varepsilon) = S_+(\varepsilon) + S_-(\varepsilon)$ et leur rapport $\rho(\varepsilon) = \frac{S_+(\varepsilon)}{S_-(\varepsilon)}$ (où ε est l'énergie du photoélectron).

Malheureusement la lame L_2 utilisée n'est quart d'onde qu'à $\lambda_2 = 3800 \text{ \AA}$ et lorsque la longueur d'onde change, la lame n'étant pas achromatique, le faisceau photoionisant n'est plus polarisé circulairement σ^+ ou σ^- . Par conséquent les signaux mesurés $S'_+(\varepsilon)$ et $S'_-(\varepsilon)$ sont différents des signaux $S_+(\varepsilon)$ et $S_-(\varepsilon)$ escomptés. On peut cependant les relier les uns aux autres facilement.

$$\left. \begin{aligned} S'_+(\varepsilon) &= S_+(\varepsilon) \cos^2 \frac{\Phi}{2} + S_-(\varepsilon) \sin^2 \frac{\Phi}{2} \\ S'_-(\varepsilon) &= S_+(\varepsilon) \sin^2 \frac{\Phi}{2} + S_-(\varepsilon) \cos^2 \frac{\Phi}{2} \end{aligned} \right\} \quad (1)$$

avec $\Phi = \frac{2\pi\delta}{\lambda} - \frac{\pi}{2}$, δ étant la différence de marche introduite par la lame quart d'onde L_2 entre les rayons ordinaires et extraordinaires.

On voit, en particulier, que pour $\delta = k\lambda + \frac{\lambda}{4}$, c'est-à-dire lorsque la lame est quart d'onde, il y a identité entre les quantités S_{\pm} et S'_{\pm} . De même quel que soit le déphasage $\frac{2\pi\delta}{\lambda}$ introduit par la lame, donc quel que soit Φ , il y a identité entre $S'_+ + S'_- = S'$ et $S_+ + S_- = S$.

$$\boxed{S'(\varepsilon) = S(\varepsilon)} \quad (2)$$

Par contre $\rho'(\varepsilon) = \frac{S'_+(\varepsilon)}{S'_-(\varepsilon)}$ est en général différent de $\rho(\varepsilon)$ mais, si l'on connaît Φ , on peut calculer $\rho(\varepsilon)$ connaissant $\rho'(\varepsilon)$ à partir des équations (1)

$$\boxed{\rho(\varepsilon) = \frac{\rho'(\varepsilon) \cos^2 \frac{\Phi}{2} - \sin^2 \frac{\Phi}{2}}{\cos^2 \frac{\Phi}{2} - \rho'(\varepsilon) \sin^2 \frac{\Phi}{2}}} \quad (3)$$

Cette expression ne sera utilisable que tant que Φ ne sera pas trop grand. Dès que $\frac{\Phi}{2}$ se rapproche de la valeur $\frac{\pi}{4}$ alors $S'_-(\epsilon)$ et $S'_+(\epsilon)$ prennent des valeurs voisines même si $S_-(\epsilon)$ et $S_+(\epsilon)$ sont très différents [voir équation (1)] et la détermination de $\rho(\epsilon)$ par l'équation (3) est de plus en plus imprécise. Ceci correspond au fait que pour la longueur d'onde λ pour laquelle $\frac{\Phi}{2} = \frac{\pi}{4}$ la lame L_2 est une lame demi-onde et son orientation doit être sans influence sur le nombre d'ions produits par photoionisation. Ce phénomène est d'autant plus rapidement observable lorsque λ_2 varie que la différence de marche δ introduite par la lame L_2 à $\lambda_0 = 3800 \text{ \AA}$ n'est pas $\delta = \frac{\lambda_0}{4}$ mais $\delta = 3\lambda_0 + \frac{\lambda_0}{4}$; le déphasage introduit par la lame varie donc très vite et l'on trouve que la lame est demi-onde pour $\lambda \approx 3560 \text{ \AA}$, valeur au voisinage de laquelle il sera donc impossible de calculer convenablement ρ à partir des données expérimentales et de la formule (3).

Pour calculer Φ nous avons mesuré la différence de marche introduite par la lame L_2 à la longueur d'onde des raies de résonance du sodium et nous avons utilisé une formule empirique donnée par J. M. BECKERS [74] pour tenir compte de la variation de la biréfringence ($n_e - n_o$) du quartz avec la longueur d'onde et calculer ainsi $\Phi(\lambda)$ pour toute la plage de longueurs d'onde utilisée. Cette méthode nous a également permis de vérifier que la lame était effectivement quart d'onde à $\lambda = 3800 \text{ \AA}$.

B - RESULTATS.

La quantité $\rho(\epsilon)$ a été calculée à partir des données expérimentales en utilisant la formule (3) et les résultats sont reportés sur la figure 12. On remarquera qu'aucun point expérimental n'est indiqué dans la région de nombre d'ondes 28000 cm^{-1} , région pour laquelle la lame L_2 est voisine d'une lame demi-onde. Les résultats expérimentaux sont comparés à une courbe théorique obtenue en calculant

$$\rho = \frac{0,6 \sigma_{3p,d}}{\sigma_{3p,s} + 0,1 \sigma_{3p,d}}$$

à partir des données théoriques $\sigma_{3p,s}(\epsilon)$ et $\sigma_{3p,d}(\epsilon)$ calculées par M. AYMAR, E. LUC-KOENIG et F. COMBET-FARNOUX [65].

Sur la figure 12 on a également porté la quantité $S'(\epsilon) = S'_+(\epsilon) + S'_-(\epsilon)$ en unités arbitraires. Or, quel que soit $\bar{\sigma}$, $S'(\epsilon) = S(\epsilon)$ ($S(\epsilon)$ a été défini à la fin du paragraphe II).

Donc :

$$\boxed{S'(\epsilon) = \frac{1}{3} k [\sigma_{3p,s}(\epsilon) + 0,7 \sigma_{3p,d}(\epsilon)]} \quad (4)$$

On a donc accès, à une constante multiplicative près, à la quantité $\sigma_{3p,s}(\epsilon) + 0,7 \sigma_{3p,d}(\epsilon)$. Connaissant également $\rho(\epsilon)$ on peut en déduire, à une constante multiplicative près, les sections efficaces partielles de photoionisation $\sigma_{3p,s}(\epsilon)$ et $\sigma_{3p,d}(\epsilon)$ et les comparer aux résultats théoriques.

Les résultats théoriques obtenus par M. AYMAR et E. LUC dans le cas du niveau $3p$ du sodium sont présentés sur la figure 13. Les sections efficaces partielles ($\sigma_{3p,s}$ et $\sigma_{3p,d}$) et totale (σ_{3p}) y sont tracées en fonction de l'énergie ϵ du photoélectron émis, exprimée en Rydberg. L'encadré de la figure 13 permet d'indiquer avec plus

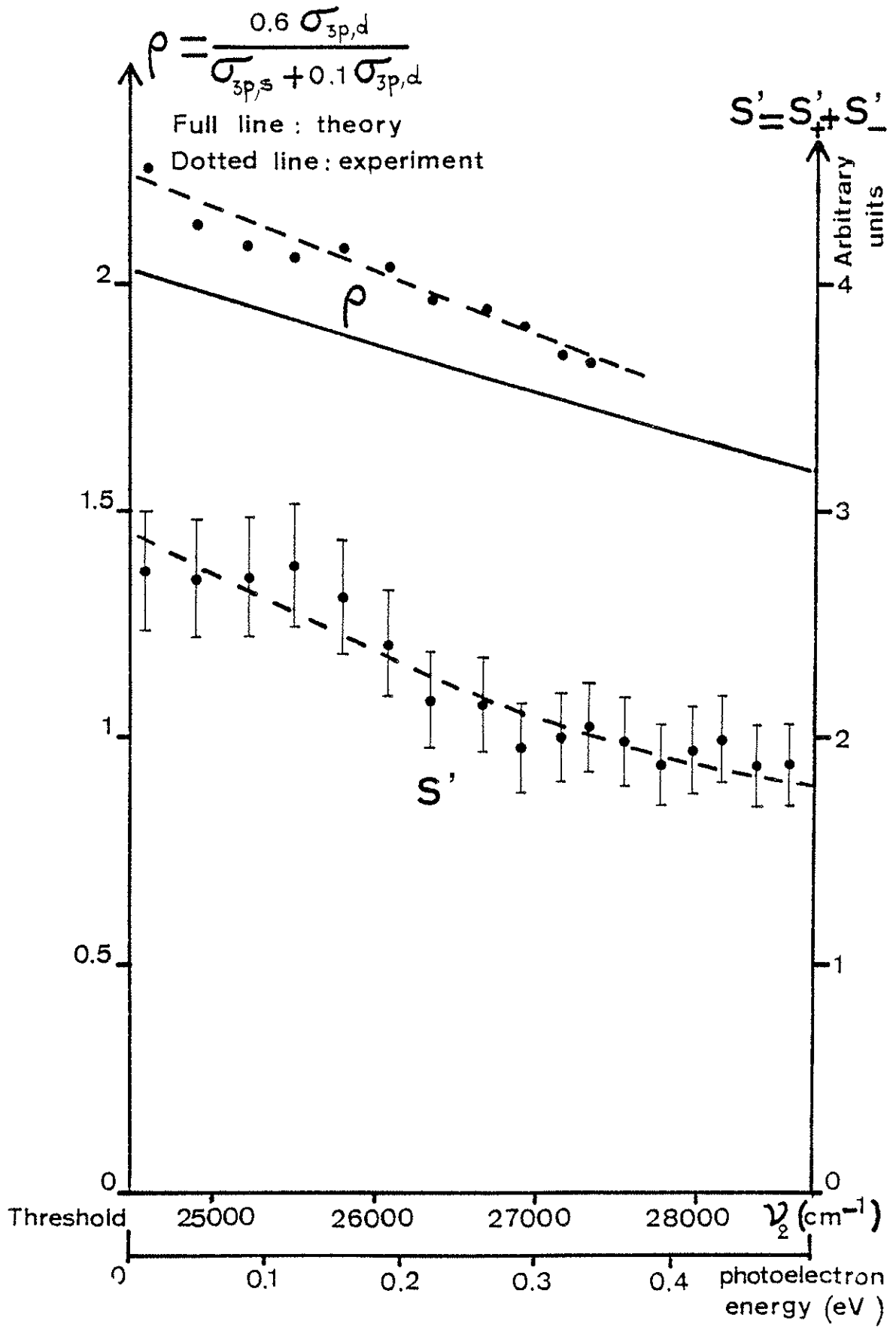


Figure 12

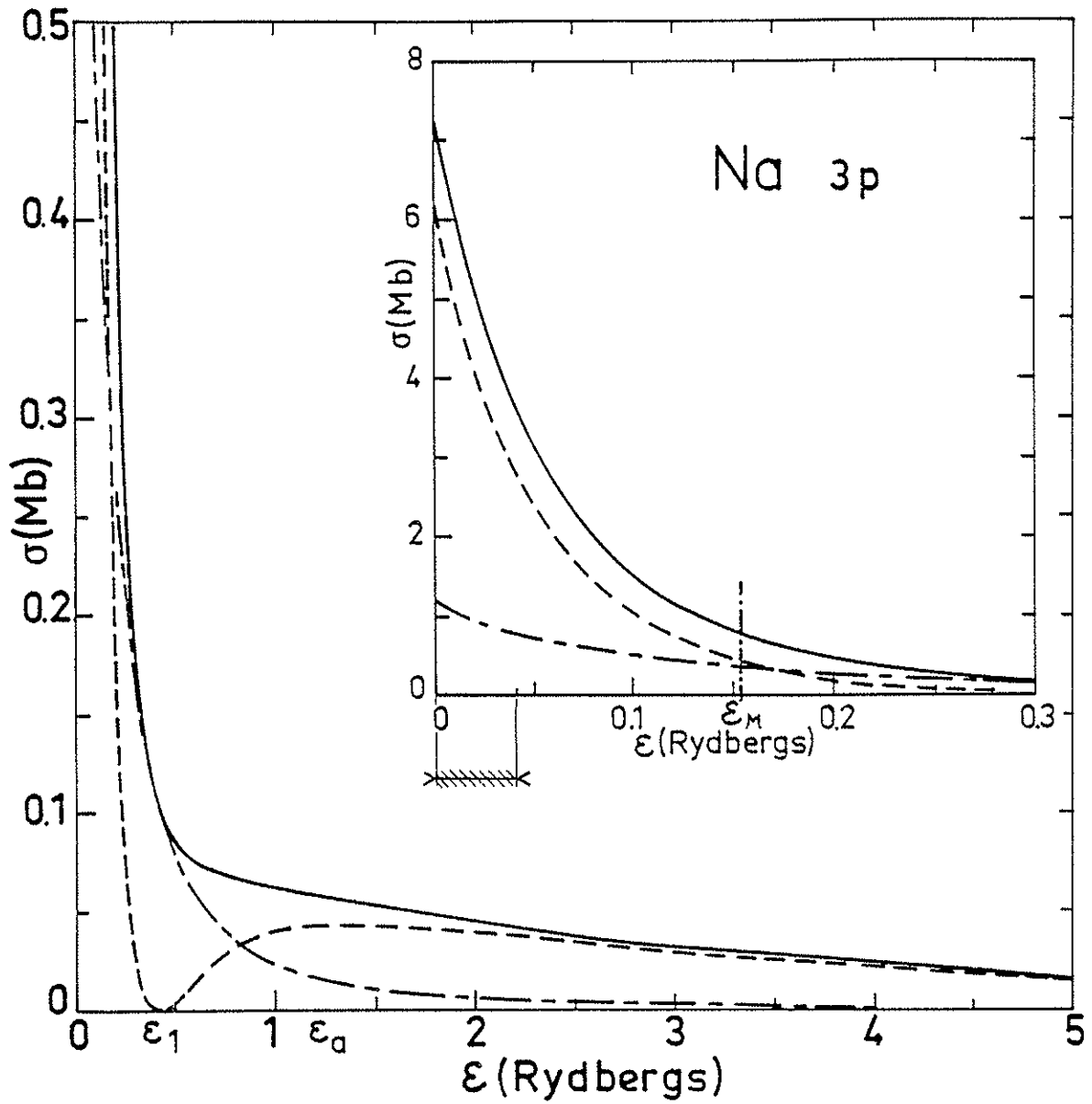
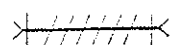


Figure 13

Courbes de sections efficaces totale et partielles pour l'état 3p du sodium. D'après les résultats de M. AYMAR, E. LUC et F. COMBET-FARNOUX [65].

$\sigma_{3p,s}(\epsilon)$ - - - - -
 $\sigma_{3p,d}(\epsilon)$ - · - · -
 $\sigma_{3p}(\epsilon)$ —————

 Plage de fréquence étudiée expérimentalement.

de précision le comportement des sections efficaces de photoionisation au voisinage du seuil. Les correspondances entre les différentes unités utilisées sont les suivantes :

1 Rydberg correspond à $109\,737,42\text{ cm}^{-1}$
1 Rydberg correspond à $13,53\text{ eV}$.

Les courbes expérimentales obtenues (fig. 12) correspondent à des valeurs de ϵ comprises entre 0 eV et 0,5 eV. Cette plage de balayage correspond à une petite portion ($0 < \epsilon < 0,037$ Rydberg) des courbes théoriques de la figure 13, juste au-dessus du seuil.

Les sections efficaces partielles de photoionisation ont été déterminées expérimentalement à un facteur multiplicatif k près. Ce facteur a été ensuite ajusté pour obtenir le meilleur accord possible entre les courbes expérimentales et théoriques simultanément pour les deux sections efficaces partielles et sur toute la plage de fréquences balayée. Le résultat obtenu est présenté sur la figure 14. La précision des résultats expérimentaux n'est certainement pas meilleure que 10% et, à cette précision, il n'apparaît aucun désaccord entre les courbes théoriques et expérimentales. En ce qui concerne la variation de la section efficace totale ($\sigma_{3p,s} + \sigma_{3p,d}$) en fonction de ϵ notre résultat est également en accord avec un résultat expérimental obtenu par ROTHE [62].

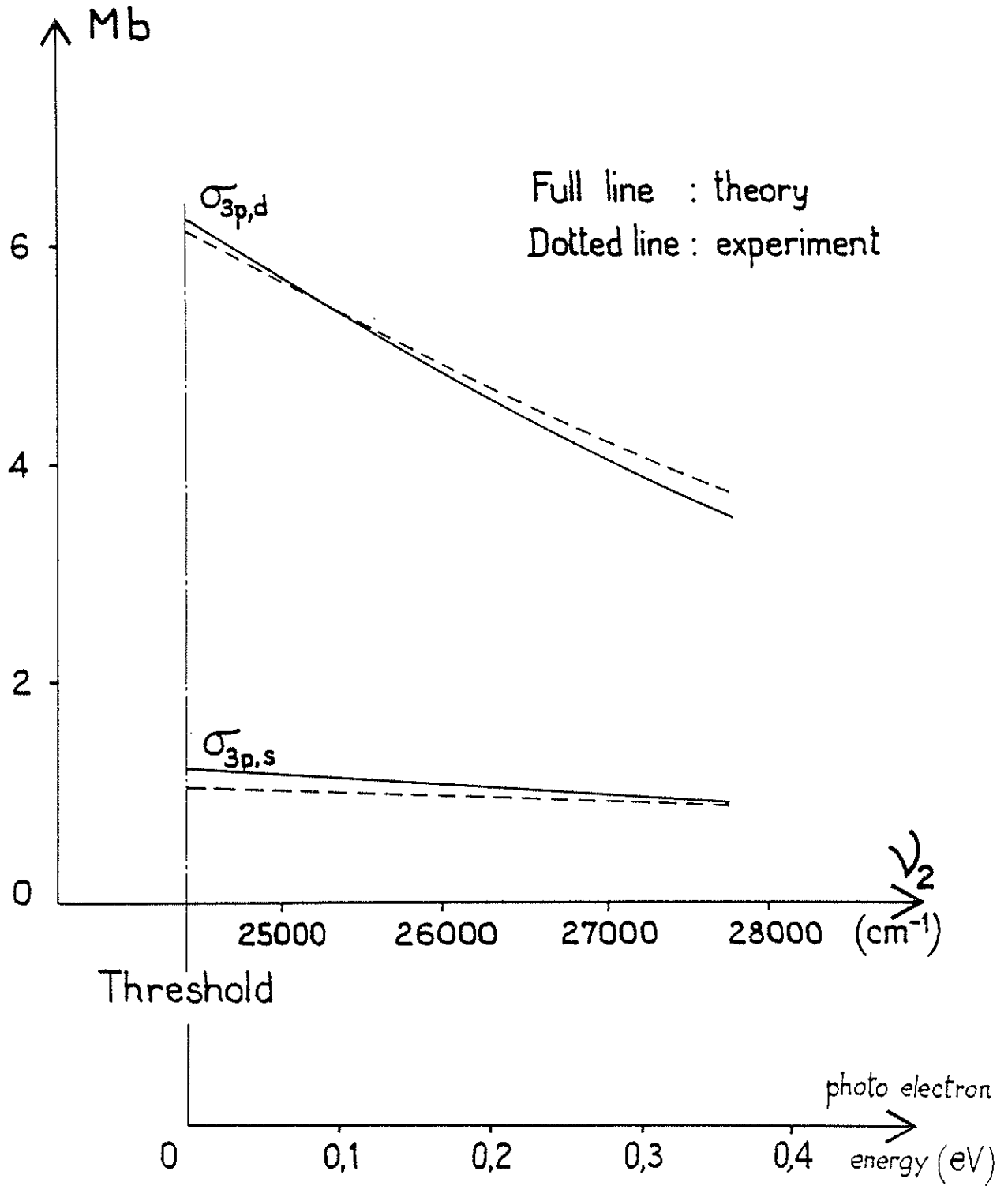


Figure 14

Résultats théoriques (M. AYMAR et E. LUC, courbes en traits pleins) et expérimentaux (-----) pour les deux sections efficaces partielles de photoionisation à partir du niveau $3p$, $\sigma_{3p,s}$ et $\sigma_{3p,d}$, au-dessus du seuil.

C - CONCLUSION.

L'expérience qui vient d'être décrite montre qu'il est possible de séparer les sections efficaces partielles de photoionisation et d'étudier leurs variations en fonction de la fréquence du rayonnement photoionisant. Le domaine de fréquence qui a pu être étudié est malheureusement assez limité et on peut penser qu'il serait intéressant d'étendre les mesures vers des énergies ϵ plus élevées, en particulier pour étudier le comportement fortement non-hydrogénoïde de la section efficace $\sigma_{3p,d}(\epsilon)$ au voisinage du minimum de Cooper prévu par la théorie pour $\epsilon = \epsilon_1 \approx 0,4$ Rydberg (voir figure 13). En fait il apparaît que pour atteindre cette valeur $\epsilon_1 = 0,4$ Rydberg il faut un rayonnement U.V. de très grand nombre d'ondes (environ 68400 cm^{-1} correspondant à $\lambda \approx 1460 \text{ \AA}$), d'où des difficultés multiples de production, de transport (absorption par l'air), etc...

Par ailleurs, l'étude de la photoionisation à partir du niveau 3p ne peut se faire facilement que tant que les photons photoionisants (de fréquence ν_2) ne sont pas assez énergétiques pour photoioniser les atomes directement à partir du fondamental. Cette restriction fournit une valeur limite ϵ_M de ϵ au-delà de laquelle l'étude de la section efficace $\sigma_{3p}(\epsilon)$ ne sera pas faisable par la méthode proposée ici.

Cette valeur ϵ_M est égale à l'énergie $h\nu_1$ de la transition $3s \leftrightarrow 3p \ ^2P_{3/2}$, soit :

$$\epsilon_M = \frac{16\ 973,379}{109\ 737,42} \approx 0,155 \text{ Rydberg} \quad (\text{voir figure 13}) .$$

Les sections efficaces de photoionisation à partir du niveau 3p seraient accessibles expérimentalement par la méthode proposée uniquement

dans la plage $[0, \epsilon_M]$. Pour atteindre ϵ_M il faudrait un rayonnement photoionisant de nombre d'onde $41\,449,65 \text{ cm}^{-1}$ (soit $\lambda_2 \approx 2412 \text{ \AA}$). Il semble donc exclu, dans le cas du niveau $3p$ du sodium, d'observer le minimum de Cooper sur $\sigma_{3p,d}(\epsilon)$ à $\epsilon = \epsilon_1$.

Par contre les résultats de M. AYMAR et E. LUC sur le potassium prévoient un comportement non hydrogénoïde pour la section efficace de photoionisation à partir du niveau $4p$ du potassium, et ceci même au voisinage du seuil ($\sigma_{4p,s}(\epsilon)$ est une fonction décroissante de ϵ , $\sigma_{4p,d}$ au contraire est une fonction croissante de ϵ au voisinage du seuil) (voir figure 15).

Une expérience analogue à celle qui vient d'être décrite pourrait peut-être être tentée sur le niveau $4p$ du potassium.

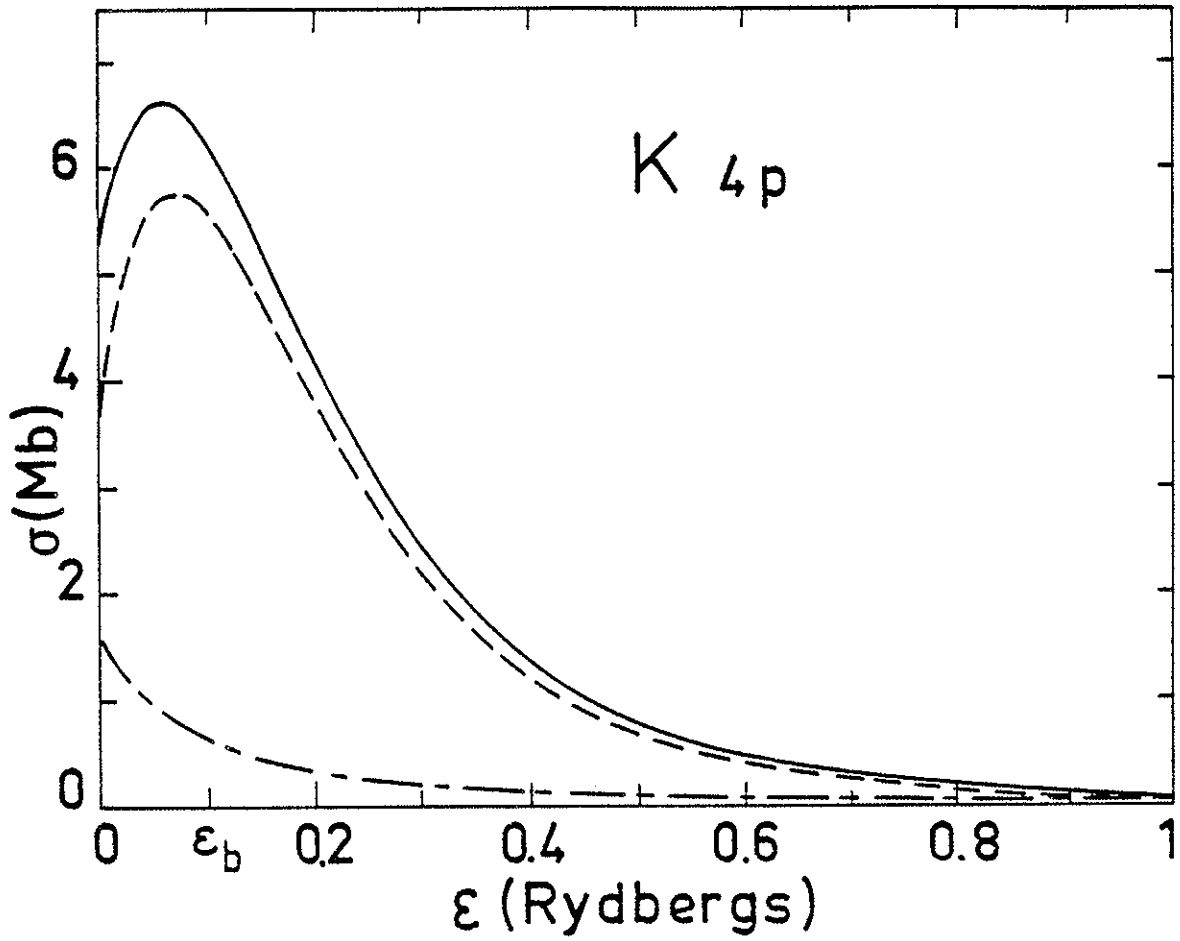


Figure 15

Courbes de sections efficaces partielles et totale pour le niveau 4p du potassium. D'après les résultats de M. AYMAR, E. LUC et F. COMBET-FARNOUX [65].

- $\sigma_{4p,s}(\epsilon)$
- - - - - $\sigma_{4p,d}(\epsilon)$
- $\sigma_{4p}(\epsilon)$

V - DETECTION PAR PHOTOIONISATION DES NIVEAUX
DE RYDBERG nf DANS LE SODIUM.

Comme il a été dit au début de cette partie de l'exposé (voir paragraphe I), la photoionisation à partir d'un niveau atomique excité peut être utilisée comme moyen de détection non optique des résonances optiques. Cette méthode a été utilisée dans une expérience qui nous a permis d'observer les niveaux de Rydberg nF du sodium, jusqu'à $n=32$ et qui est décrite dans la publication donnée en annexe (Annexe X).

Ces niveaux sont atteints par une excitation optique à trois étages résonnants. Le montage expérimental utilise le jet atomique qui a été décrit dans le §.III-A. Les atomes de sodium du jet atomique interagissent en un même point P avec trois rayonnements laser. Deux lasers à colorant continus permettent de peupler le niveau $4d \ ^2D_{5/2}$ via le niveau $3p \ ^2P_{3/2}$, un laser infrarouge pulsé accordable induit la transition $4d \ ^2D_{5/2} \rightarrow nF$ correspondant au troisième étage. Ce même rayonnement infrarouge photoionise les atomes portés dans l'état nF et sert donc à la fois pour l'excitation et la détection de la transition $4d \ ^2D_{5/2} \rightarrow nF$.

- Le jet atomique et le système de détection et de comptage des ions créés par photoionisation sont ceux qui ont été décrits au §.III-A ;
- Le rayonnement laser infrarouge accordable est produit en utilisant l'oscillateur paramétrique (Chromatix modèle 1020) pompé par la raie rouge ($\lambda = 0,659 \mu\text{m}$) d'un laser NdYAG muni d'un doubleur de fréquence (Chromatix modèle 1000). Pour atteindre les différents niveaux

nF observés, la fréquence du rayonnement infrarouge a été balayée dans la plage de 6000 cm^{-1} - 7000 cm^{-1} .

Le fonctionnement de ces appareils a été décrit précédemment au §.III-B.

- La largeur spectrale du laser infrarouge ($\sim 2 \text{ cm}^{-1}$) ainsi que la précision de la mesure du nombre d'ondes de ce rayonnement ne nous ont pas permis de faire des mesures précises de l'énergie des niveaux nF mais seulement de les identifier sans ambiguïté.

L'intérêt de cette expérience est d'une part de montrer que l'on peut peupler raisonnablement ces niveaux nF , d'autre part, de mettre en oeuvre la méthode de détection par photoionisation dans un cas où elle peut présenter des avantages par rapport aux autres méthodes de détection.

En effet, la méthode de détection par fluorescence est très efficace dans le cas de transitions entre niveaux profonds, par exemple dans le cas des raies de résonances [11]; par contre, lorsque l'on étudie une série $n\ell$ d'états de Rydberg, cette méthode devient de plus en plus difficile au fur et à mesure que n augmente [75]. Pour la détection par photoionisation, par contre, si l'on a la possibilité d'avoir un rayonnement photoionisant qui permette d'atteindre, à partir de l'état excité, un point du continuum juste au-dessus du seuil, on peut profiter du fait que la section efficace de photoionisation au seuil augmente en général avec n pour une série $n\ell$ donnée, comme cela a été montré par les calculs de M. AYMAR, E. LUC-KOENIG et F. COMBET-FARNOUX [65].

On peut ainsi concevoir que, pour une série $n\ell$ donnée, la méthode de détection par photoionisation soit plus avantageuse que celle par fluorescence au-delà d'un certain n .

D'autre part, pour les états atomiques peu liés (Etats de Rydberg) il existe une méthode de détection dont l'efficacité est de 100% ; c'est la méthode d'ionisation par un champ électrique statique. Pour une série $n\ell$ donnée cette méthode est d'autant plus facile à appliquer que n est grand car elle nécessite l'utilisation d'un champ électrique pulsé d'autant plus faible que le niveau à détecter est peu lié (cette méthode sera décrite en détail dans la 3ème partie de l'exposé).

Pour des états $n\ell$ ayant une valeur de n élevée, c'est donc la méthode idéale ; par contre elle devient plus difficile à mettre en oeuvre lorsque n diminue.

On peut donc penser que, pour des niveaux correspondant à des valeurs de n intermédiaires $n \in [10, 20]$, la détection par photo-ionisation peut être comparée favorablement à la fois à la détection par fluorescence et à la détection par ionisation par champ électrique statique.

Troisième Partie

IONISATION PAR CHAMP
DES NIVEAUX DE RYDBERG DU SODIUM

I - INTRODUCTION.

Il était jusqu'à ces dernières années impossible de peupler sélectivement par une excitation optique un état de Rydberg $n\ell$ donné (n élevé) à partir de l'état fondamental ou d'un état excité profond par suite de la faible probabilité de transition entre cet état de Rydberg et l'état "profond" de départ. Les autres formes d'excitation présentaient l'inconvénient de ne pas être sélectives.

La situation a été totalement modifiée par le développement des lasers à longueur d'onde variable qui peuvent fournir un rayonnement de densité spectrale d'énergie suffisamment forte pour compenser la faible probabilité de transition et ceci dans un intervalle spectral très étroit et balayable, ce qui permet une excitation sélective.

Cette possibilité d'une excitation sélective d'un état de Rydberg donné a entraîné un développement important des études faites sur les états de Rydberg depuis 1975.

Parallèlement au problème de l'excitation d'un état de Rydberg se pose le problème de la détection de cet état. Pour une série $n\ell$ d'états de Rydberg, la probabilité de transition vers un niveau profond donné varie comme $\frac{1}{n^3}$, l'observation d'un signal de fluorescence dans le domaine optique devient donc de plus en plus difficile à mesure que n augmente. L'atome se désexcite par cascade en passant par un grand nombre d'états intermédiaires et en émettant des photons dans

l'infrarouge lointain et non par émission d'un seul photon (visible ou ultra violet) et retour direct à son état de départ.

Ces photons dans l'infrarouge lointain ne sont pas utilisables pour réaliser une détection sensible et sélective. Pour les états $n\ell$ de n élevé, la méthode de détection par fluorescence n'est donc pas une méthode bien adaptée.

Par contre on peut tirer profit du fait que pour un atome dans un état de Rydberg l'électron de valence n'est que très faiblement lié à l'atome et un champ électrique extérieur raisonnable (typiquement quelques kV/cm) suffit pour libérer l'électron de valence et ioniser l'atome étudié. On est alors ramené au problème beaucoup plus simple de la détection de particules chargées (ions ou électrons). Cette méthode de détection par ionisation dans un champ électrique statique a été utilisée pour la première fois par STEBBINGS et ses collaborateurs sur les états $n\ell$ du xénon [76] puis par KLEPPNER et ses collaborateurs sur les états n_s et n_d du sodium [75] en 1975. Depuis cette date cette méthode a été utilisée comme moyen de détection dans de multiples expériences sur les états de Rydberg. Elle présente de grands avantages de sensibilité, de sélectivité et de simplicité de mise en oeuvre.

Par ailleurs il est apparu progressivement que le phénomène d'ionisation dans un champ statique n'était pas aussi simple qu'il pouvait paraître au premier abord et un certain nombre de groupes de recherche ont étudié le phénomène physique de l'ionisation par champ pour lui-même, au cours de ces dernières années [76][77][78].

C'est dans cette optique que se situe le travail que j'ai effectué sur les niveaux de Rydberg du sodium et qui est décrit dans cette partie de l'exposé.

II - POSITION DU PROBLEME.

A - MODELE ELEMENTAIRE.

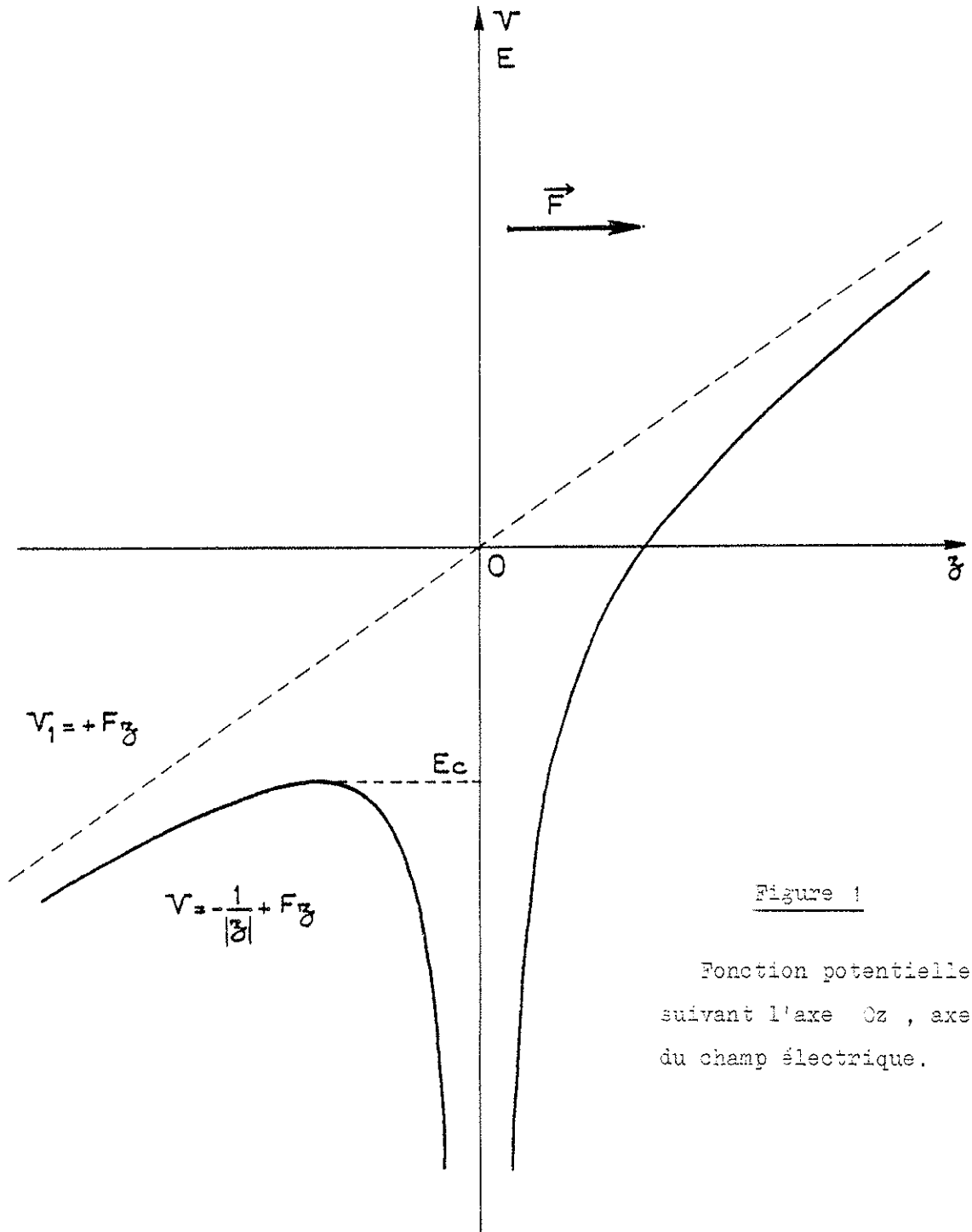
Soit un atome alcalin dans un état de Rydberg et placé dans un champ électrique extérieur \vec{F} de direction parallèle à l'axe \vec{Oz} . La fonction potentielle qui permet de décrire le mouvement de l'électron de valence peut s'écrire :

$$\boxed{V(r) = -\frac{1}{r} + Fz} \quad (\text{en unités atomiques}), \quad (1)$$

le premier terme représentant l'attraction coulombienne due au reste de l'atome, le second l'effet du champ électrique \vec{F} .

L'allure de cette fonction potentielle le long de l'axe Oz est représentée sur la figure 1.

A proprement parler, le système à une dimension représenté sur la figure 1 n'a pas d'états liés puisque le potentiel tend vers $-\infty$ quand $z \rightarrow -\infty$. Toutefois la présence d'un puits de potentiel au voisinage de $z=0$ fait que, pour des énergies E inférieures à E_0 , il existe des états quasi-liés qui ne sont que faiblement couplés avec le continuum par effet tunnel à travers la barrière de potentiel. Un atome dans un tel état quasi-lié perdra donc son électron de valence et s'ionisera par effet tunnel mais la vitesse de ce phénomène d'ionisation par effet



tunnel dépend de façon critique de la hauteur de la barrière de potentiel à franchir, donc de l'énergie E de l'état étudié par rapport à E_c , l'énergie du "col" de la fonction potentielle. Tant que E est notablement inférieure à E_c l'état peut être considéré comme stable. Lorsque E se rapproche de E_c la vitesse d'ionisation par effet tunnel augmente très rapidement ; on passe au voisinage de $E = E_c$

d'une valeur négligeable à une valeur très grande. Pour $E > E_c$ il n'y a plus d'états liés, ou quasi-liés*.

D'où l'introduction de la notion de seuil d'ionisation.

A partir de l'équation (1) on peut calculer E_c

$$E_c = -2\sqrt{F} \quad (2)$$

(Le zéro d'énergie correspondant à la limite d'ionisation de l'atome non perturbé).

Pratiquement pour un champ \vec{F} donné on s'attend à ce que l'atome s'ionise si, et seulement si, il est dans un état d'énergie $E \gg E_c = -2\sqrt{F}$.

Pour un atome dans un état d'énergie E donnée on s'attend à ce qu'il s'ionise si, et seulement si, le champ \vec{F} est suffisamment fort pour que E_c soit inférieur à E

$$-2\sqrt{F} = E_c \ll E$$

ce qui s'écrit aussi

$$F \geq \frac{E^2}{4} = F_c \quad (3)$$

E doit être, normalement, l'énergie de l'atome au moment où il s'ionise donc dans un champ électrique \vec{F} voisin de F_c . On peut faire une approximation supplémentaire et remplacer E par E_0 l'énergie de l'atome non perturbé. On peut alors exprimer E_c en fonction du nombre quantique principal effectif n^* $E_0 = -\frac{1}{2(n^*)^2}$.

D'où :

$$F_c = \frac{1}{16(n^*)^4} \quad (4)$$

* Ceci est vrai, du moins dans le cas d'un problème à une dimension. On verra que, par contre, ceci est faux pour le cas réel (dimension 3).

On trouve ainsi une loi de variation du champ critique F_c (champ minimum pour que l'atome s'ionise) pour les séries d'états de Rydberg $n\ell$. Cette loi est obtenue avec un modèle extrêmement grossier (modèle à une dimension pour le potentiel) et au prix d'une approximation supplémentaire ($E = E_0$). Nous verrons que, de façon assez surprenante, elle prédit assez correctement les résultats expérimentaux.

B - SCHEMA de PRINCIPE d'une EXPERIENCE TYPE.

Le schéma de principe d'une expérience de mesure de seuil d'ionisation est représenté sur la figure 2.

Les atomes d'un jet atomique sont excités par le rayonnement d'un laser à colorant pulsé ou de plusieurs lasers dans le cas d'une excitation à plusieurs étages. Afin d'éliminer l'effet Doppler les faisceaux lumineux sont perpendiculaires au jet atomique. Cette excitation optique permet de peupler, en accordant les fréquences des rayonnements laser, un niveau de Rydberg $n\ell$ déterminé. La zone d'interaction est située entre les plaques d'un condensateur. Un champ électrique F d'amplitude accordable peut être ainsi appliqué aux atomes avec un retard τ également accordable après l'excitation optique. Les ions produits sont accélérés et viennent frapper la première dynode d'un multiplicateur d'électrons qui est suivi d'un système de comptage. Si les fréquences des lasers sont maintenues fixes pour peupler sélectivement un niveau de Rydberg donné, on peut enregistrer le nombre d'ions produits en fonction de l'amplitude du champ électrique F . Compte tenu de ce qui a été dit dans le paragraphe précédent, on s'attend à trouver une courbe présentant un seuil abrupt pour $F = F_c$ (fig. 3).

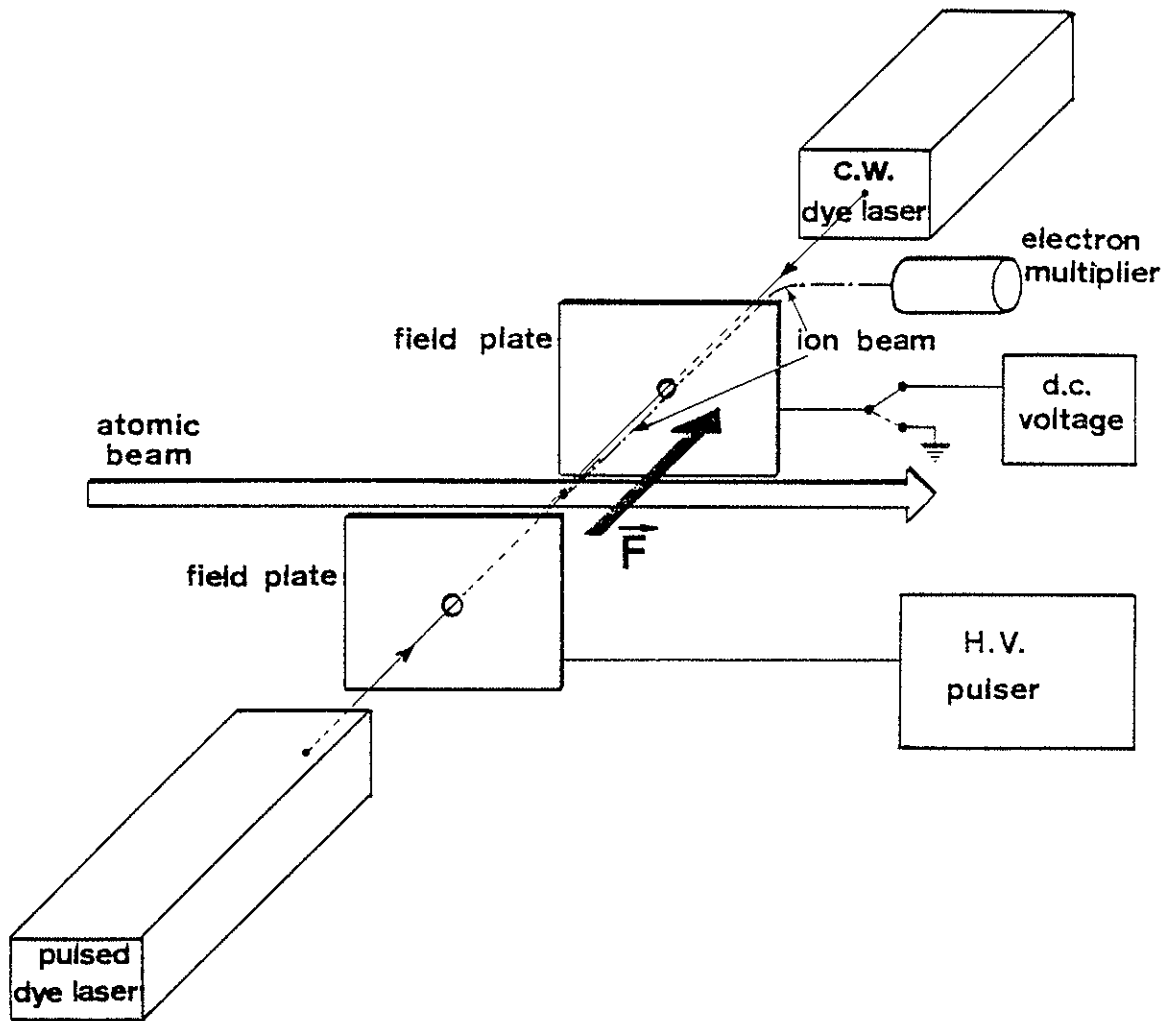


Figure 2

Schéma de principe d'une expérience d'ionisation par champ.

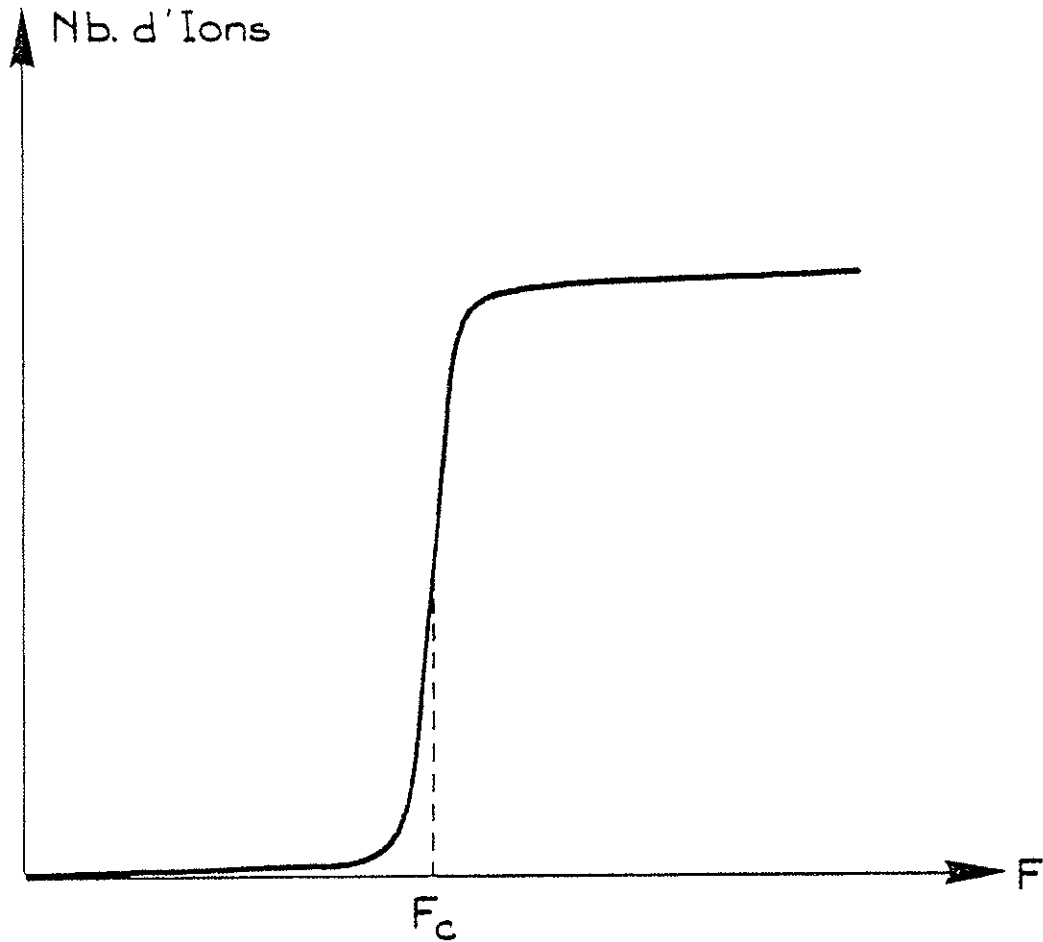


Figure 3 : Nombre d'ions en fonction de l'amplitude du champ électrique F appliqué après l'excitation optique d'un niveau de Rydberg déterminé. F_c = champ électrique critique.

(Pour $F < F_c$ pas d'ions produits, pour $F > F_c$ tous les atomes excités sont rapidement ionisés).

De nombreux auteurs ont obtenu des courbes expérimentales analogues à la courbe schématisée sur la figure 3. STEBBINGS sur le xénon [76] en 1975, KLEPPNER et ses collaborateurs sur les niveaux ns du sodium [75], DUONG, LIBERMAN et PINARD sur les niveaux ns, np, nd du rubidium [17] etc...

De plus dans le cas du rubidium, DUONG, LIBERMAN et PINARD ont trouvé que la loi $F_c = \frac{1}{16n^4}$ était très bien vérifiée pour tous les niveaux étudiés alors que dans d'autres expériences [79], et en particulier dans les expériences de KLEPPNER sur le sodium [75], la quantité $F_c \times 16n^4$

restait à peu près constante mais différente de l'unité de façon assez significative (+ 10% environ).

D'autre part KLEPPNER, toujours dans la même expérience, a observé pour les niveaux nd un seuil beaucoup moins abrupt que pour les niveaux ns et a attribué ce fait à la multiplicité du niveau d . En présence du champ électrique les atomes initialement dans l'état nd se trouvent dans plusieurs niveaux Stark correspondant aux différentes valeurs possibles de $|m_L|$. Si ces différents niveaux Stark s'ionisent avec des seuils différents mais voisins. La courbe représentant le signal d'ions en fonction du champ électrique doit présenter plusieurs seuils voisins et, dans le cas où ils ne sont pas assez différents, un seuil moins abrupt.

GALLAGHER, en opérant sur des niveaux ns , np et nd du sodium pour des valeurs de n plus faibles ($n=15$ à $n=20$) [80], a confirmé cette interprétation. Il a en effet observé des seuils multiples sur les états nd et np . Le nombre de seuils observés correspond, en général, au nombre de valeurs possibles pour $|m_L|$. Les courbes que l'on obtient pour le signal d'ions en fonction du champ ionisant F présentent une série de plateaux séparés par des augmentations brusques du signal d'ions. Chacune d'elles correspond à un seuil d'ionisation pour un état de $|m_L|$ donné. En faisant varier les conditions de l'excitation optique, en particulier la polarisation des rayonnements excitateurs, on peut déterminer à quelle valeur de $|m_L|$ correspond chaque seuil.

Dans certains cas cependant les seuils multiples ne peuvent pas s'expliquer de cette façon. Dans l'expérience citée plus haut, GALLAGHER a en effet observé des seuils multiples pour certains états non dégénérés (les états nd , $|m_L|=2$ pour $n > 18$) et il a proposé comme explication du phénomène une évolution partiellement adiabatique des atomes lorsque le champ électrique ionisant est appliqué : les atomes initialement dans un seul niveau en champ électrique nul se

retrouvent dans plusieurs niveaux différents en champ électrique fort et, si ceux-ci présentent des seuils d'ionisation différents, on peut observer des seuils multiples.

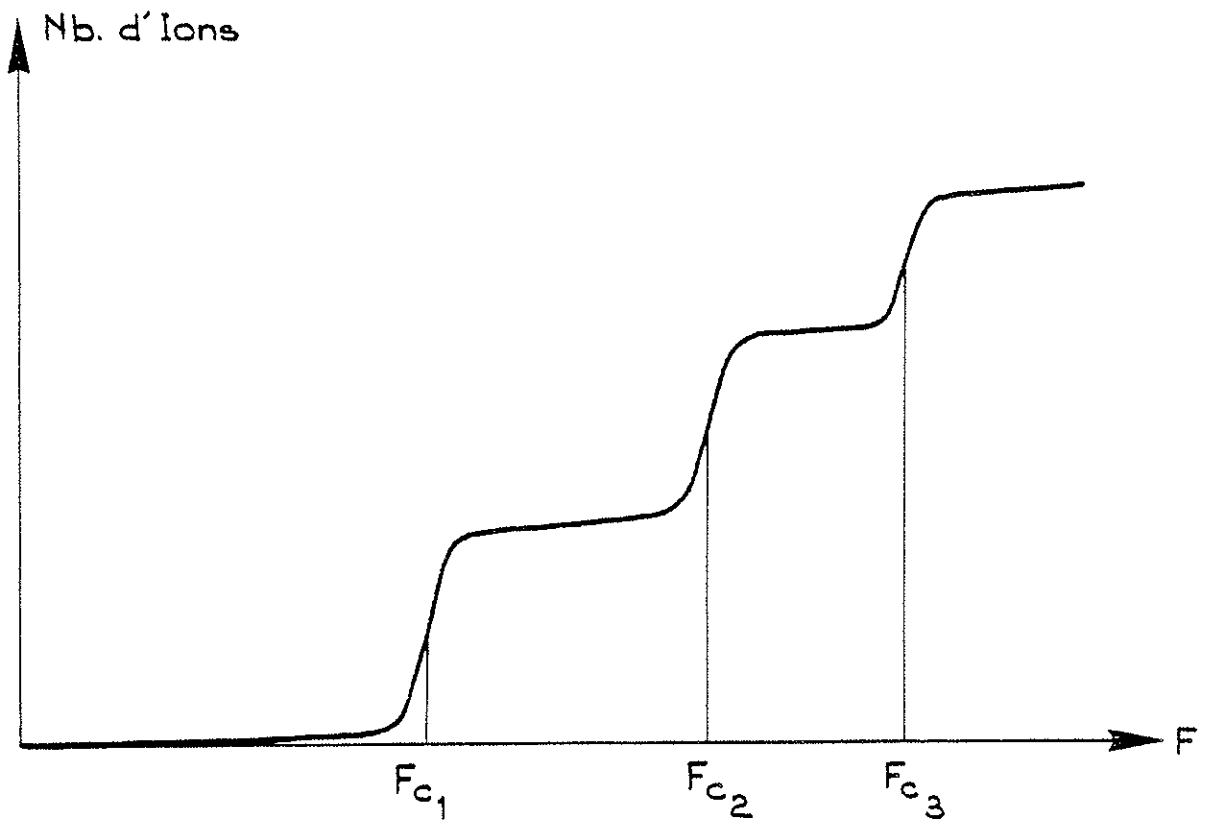


Figure 4

Nombre d'ions en fonction de l'amplitude du champ électrique F appliqué après l'excitation optique d'un niveau de Rydberg. Cas d'un niveau multiple conduisant à plusieurs états Stark de $|m_L|$ différents.

F_{c_i} : champs électriques critiques.

C - PASSAGE ADIABATIQUE et DIABATIQUE.

Il apparaît donc important de comprendre comment l'atome, initialement dans un état en champ nul donné, évolue, lorsque le champ électrique est appliqué, jusqu'à un (ou plusieurs) état en champ fort, juste avant de s'ioniser.

Cette étude a été menée par plusieurs groupes de chercheurs [80] [81] [82] qui ont étudié du point de vue expérimental et du point de vue théorique les positions des niveaux Stark d'un atome (sodium ou rubidium) pour un champ électrique donné, et ceci pour des valeurs du champ électrique allant de zéro à la valeur du champ critique.

La grande différence avec le spectre des niveaux atomiques de l'hydrogène est que les niveaux provenant de n différents et ayant même $|m_L|$ ne sont plus indépendants et ne peuvent, par conséquent, plus se croiser. Plus les niveaux ont un caractère non hydrogénoïde marqué, plus l'écart d'énergie à l'anticroisement (gap) est grand.

Dans le cas du sodium on s'attend donc à ce que les anticroisements observés entre états de $|m_L| = 0$ soient plus forts que ceux observés entre états de $|m_L| = 1$, les "gaps" les plus faibles étant observés pour les anticroisements de niveaux de $|m_L| = 2$. Ceci a été effectivement observé par KLEPPNER [81] pour les états $|m_L| = 0$ et $|m_L| = 1$.

Il faut maintenant savoir comment un atome dans un état donné franchit un anticroisement lorsque le champ électrique \vec{F} augmente.

Deux cas extrêmes peuvent se présenter qui sont schématisés sur la figure 5. Sur la figure 5a, les deux niveaux mis en jeu sont faiblement couplés et l'énergie de séparation E_a (gap) est faible comparée à $\frac{\hbar}{\Delta t}$ où Δt est le temps que met l'atome pour franchir la

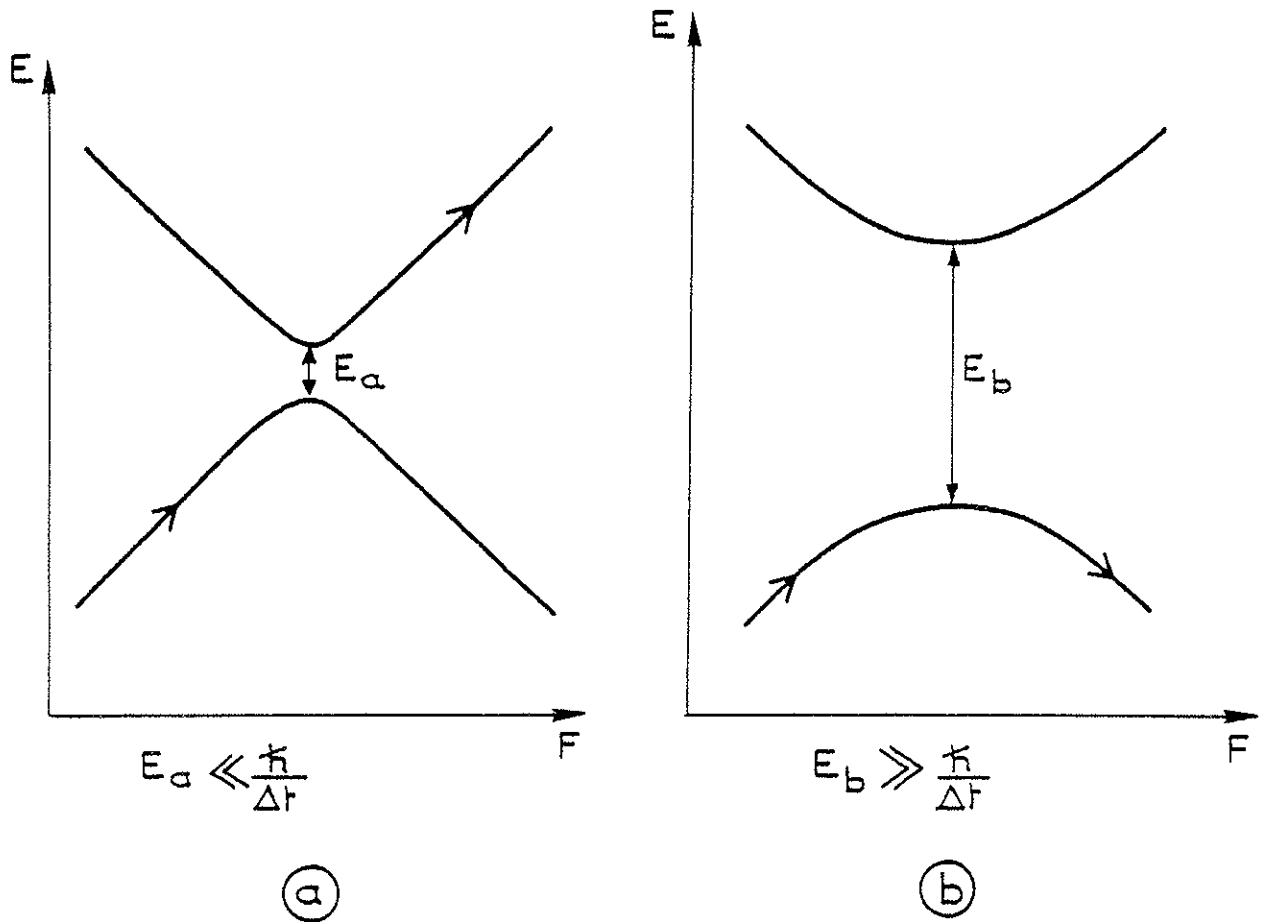


Figure 5

Franchissement d'un anticroisement par un atome.

- (a) de façon diabatique
- (b) de façon adiabatique

zone de croisement. Dans ce cas le passage de l'atome sera diabatique, il traversera l'anticroisement comme indiqué par les flèches de la figure 5a et comme si les niveaux n'étaient pas couplés.

Sur la figure 5b au contraire les deux niveaux sont fortement couplés et si l'on a la relation $E_b \gg \frac{\hbar}{\Delta t}$ le passage de l'atome se fera de façon adiabatique comme indiqué par les flèches de la figure 5b.

Dans le cas intermédiaire où E_{gap} est de l'ordre de $\frac{\hbar}{\Delta t}$, le passage n'est ni totalement adiabatique, ni totalement diabatique et l'atome peut se retrouver avec une certaine probabilité sur chacun des deux niveaux d'énergie.

On conçoit bien que le caractère adiabatique ou diabatique du franchissement d'un croisement donné dépend de la vitesse à laquelle ce croisement est franchi, donc de la vitesse à laquelle le champ électrique est établi. Pour des vitesses inférieures à 2×10^{10} Volts/cm.s GALLAGHER [80] a montré que le passage de l'atome de champ nul en champ fort se faisait de façon adiabatique (donc que tous les croisements étaient franchis de façon adiabatique) pour les états $|m_L = 0$ et $|m_L| = 1$.

Comme pour les états $|m_L| = 2$ les "gaps" d'énergie des anticroisements sont plus faibles que pour les états $|m_L| = 0$ et $|m_L| = 1$ il n'est pas exclu, qu'à la même vitesse d'établissement du champ électrique, le franchissement de certains anticroisements se fasse de façon diabatique ou de façon intermédiaire. C'est cette hypothèse qui a été faite par GALLAGHER pour expliquer les seuils multiples observés pour certains états nd $|m_L| = 2$ mais aucune confirmation n'a été apportée.

D - MOTIVATIONS.

Un certain nombre de points obscurs demeuraient donc et l'expérience qui va être décrite dans le chapitre suivant a été entreprise pour essayer de les éclaircir. En premier lieu le fait que la loi $F_c = \frac{1}{16(n^*)^4}$ soit bien vérifiée pour le rubidium et ne le soit qu'à un facteur d'échelle (environ 10%) pour le sodium nous a conduit à refaire les mesures de KLEPPNER sur le sodium et à les étendre à des valeurs de n plus élevées pour voir si ce facteur d'échelle se modifiait lentement. Nous avons ensuite développé une méthode légèrement différente de celle de GALLAGHER pour étudier les seuils multiples sur les états d et leur dépendance en $|m_L|$.

III - LA METHODE EXPERIMENTALE.

A - PRINCIPE de l'EXPERIENCE.

La figure 2 correspond au schéma de principe de l'expérience. Les atomes d'un jet atomique de sodium interagissent simultanément avec deux lasers à colorant. Le premier laser fonctionne en régime continu et sa fréquence est asservie sur celle de la transition optique $3\ ^2S_{1/2}\ F=2 \rightarrow 3\ ^2P_{3/2}\ F'=3$. Le sous-niveau $F'=3$ du niveau $3\ ^2P_{3/2}$ est, par suite, peuplé de façon permanente. Le deuxième laser à colorant est un laser pulsé dont la fréquence peut être balayée pour peupler successivement les différents états très excités n_s et n_d . On peut également peupler directement les états n_p à partir de l'état $3p$ par mélange Stark en appliquant un petit champ électrique continu dans la zone d'interaction. Cette zone d'interaction est située entre les plaques métalliques d'un condensateur plan et on peut appliquer, avec un retard réglable après l'impulsion laser, une impulsion de champ électrique (ou un créneau de champ électrique). Les atomes, dans l'état de Rydberg peuplé optiquement, s'ionisent dans le champ électrique intense ; les ions sont alors accélérés, collectés et comptés.

B - Les LASERS.

Le premier étage de l'excitation optique est obtenu avec un laser à colorant monomode commercial (Spectra Physics modèle 370). La transition induite ($3^2S_{1/2} F=2 \rightarrow 3^2P_{3/2} F'=3$) n'engendrant aucun pompage hyperfin on peut, avec la puissance dont on dispose (environ 5 mW), maintenir en permanence une proportion importante de la population atomique dans le niveau supérieur ($3^2P_{3/2}$).

Le second rayonnement laser, qui induit les transitions $3^2P_{3/2} F'=3 \rightarrow ns$ ou nd est obtenu de la façon suivante : la raie rouge ($\lambda = 659 \text{ nm}$) d'un laser NdYAG doublé (Chromatix modèle 1000) sert de pompe pour un laser à colorant. Le rayonnement de sortie de ce laser à colorant est ensuite doublé en fréquence grâce à un cristal de iodate de lithium (LiIO_3) pour fournir le rayonnement monochromatique accordable de fréquence convenable.

Le laser NdYAG doublé (Chromatix modèle 1000) est celui dont il a été question dans la deuxième partie de l'exposé (Photoionisation). Le laser à colorant pulsé est semblable à ceux qui ont déjà été utilisés par DUONG, LIBERMAN et PINARD [17] et par CAMUS et MORILLON [83]. La cavité laser est représentée sur la figure 6. Le prisme P_1 et la lentille L_1 permettent de focaliser le faisceau pompe dans la cellule à colorant (CC). La cavité est fermée à une extrémité par un miroir sphérique et à l'autre par un réseau R précédé d'un prisme P_2 attaqué en incidence rasante. Le rôle du prisme P_2 est de permettre l'éclairement d'un grand nombre de traits du réseau afin d'obtenir pour le rayonnement de sortie du laser à colorant une largeur spectrale aussi fine que possible. Le prisme P_2 joue donc un rôle comparable, dans cette cavité, au télescope utilisé dans d'autres montages [84].

La sortie du rayonnement laser se fait par réflexion sur la face du prisme P_2 attaquée en incidence rasante.

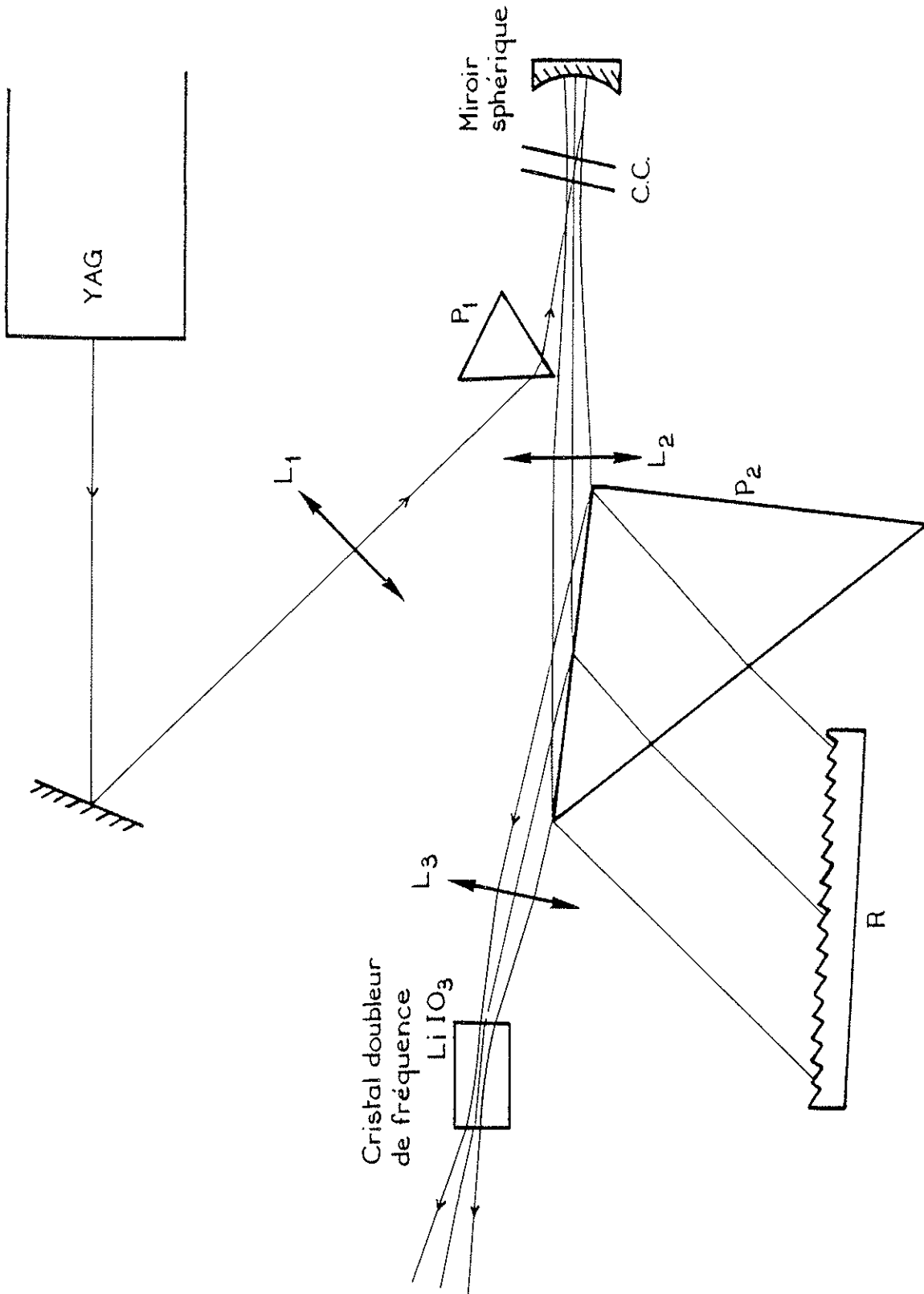
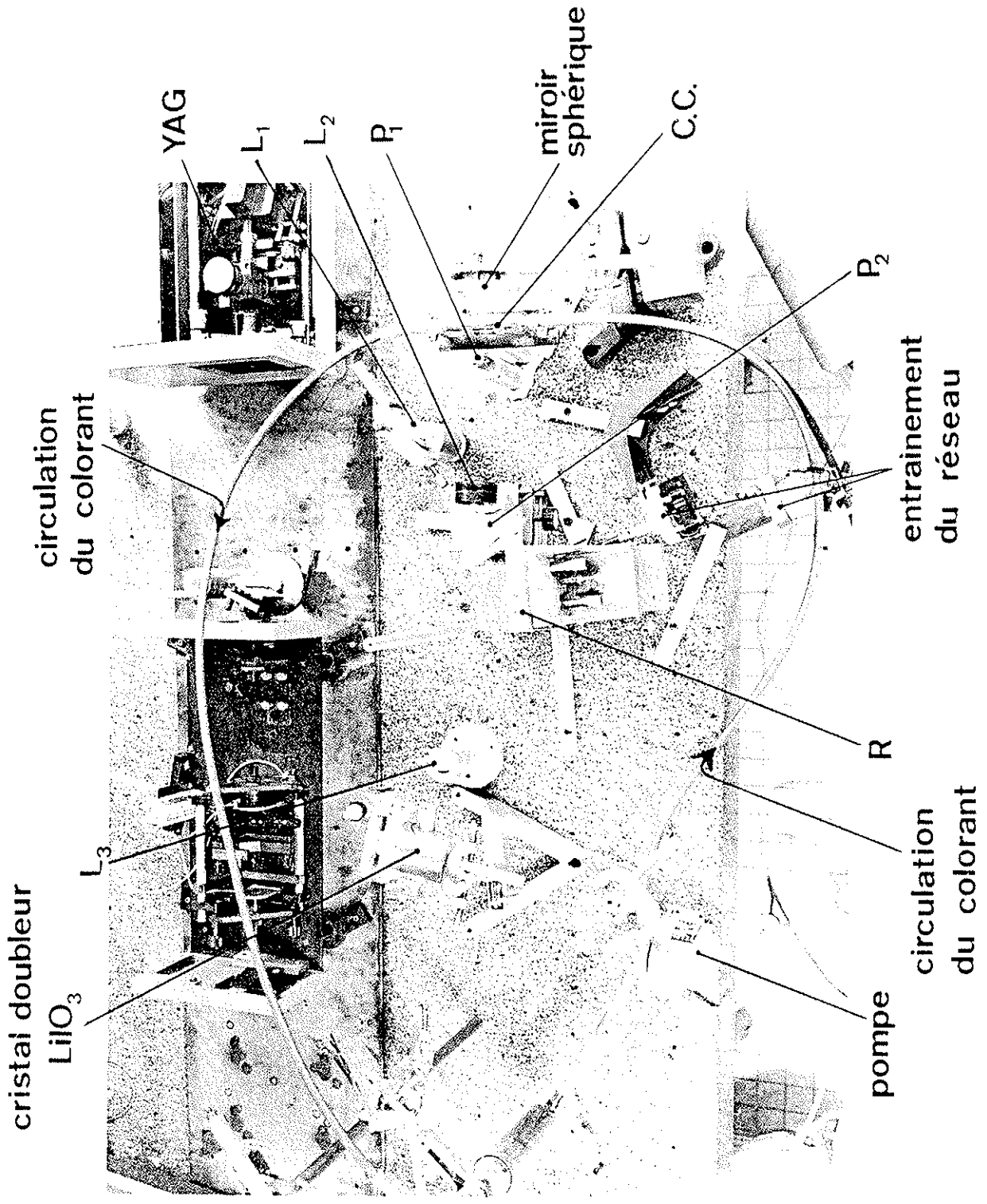


Figure 7 : ci-contre : Photo du laser à colorant pulsé.

Figure 6 : Laser à colorant pulsé.



Une pompe permet de faire circuler le colorant dans la cellule. Le colorant utilisé est du HITC en solution dans du diméthylsulfoxyde (DMSO).

La figure 7 présente une photographie du laser à colorant et du système de circulation du colorant. Les différents éléments de la cavité y sont repérés par les mêmes lettres que la figure 6.

Le rayonnement de sortie, dont la longueur d'onde est accordable dans le domaine 810 - 900 nm en tournant le réseau R de la cavité, est focalisé par la lentille L_3 dans un cristal de $LiIO_3$. Les propriétés non linéaires de la susceptibilité électrique de ce cristal permettent d'obtenir un doublage de fréquence et de convertir le rayonnement infrarouge du laser à colorant en un rayonnement violet dont la fréquence ν_2 peut être balayée dans le domaine de fréquence permettant d'exciter les niveaux de Rydberg du sodium. Pour balayer cette fréquence ν_2 le réseau R de la cavité du laser à colorant est tourné très lentement par un moteur synchrone suivi d'une très forte démultiplication. Il faut, par ailleurs, de temps en temps, tourner manuellement le cristal doubleur de $LiIO_3$ pour maintenir la condition d'accord de phase et obtenir ainsi un maximum de puissance pour le rayonnement violet. Les impulsions laser ainsi obtenues, pour le rayonnement violet, ont une durée de 100 nanosecondes environ, une fréquence de répétition de 50 Hz maximum (fixée par le laser YAG) et une puissance crête de quelques dizaines de watts. La largeur spectrale de ce rayonnement est de $0,3 \text{ cm}^{-1}$ environ, comme on peut le voir sur l'enregistrement présenté sur la figure 8 puisque l'on peut très facilement résoudre les niveaux n_s et n_d du sodium jusqu'à $n=55$. L'écart d'énergie entre les niveaux $54d$ et $55s$, calculés en prenant un défaut quantique nul pour le niveau $54d$ et de 1,35 pour le niveau $55s$ [75] est de $0,5 \text{ cm}^{-1}$ environ.

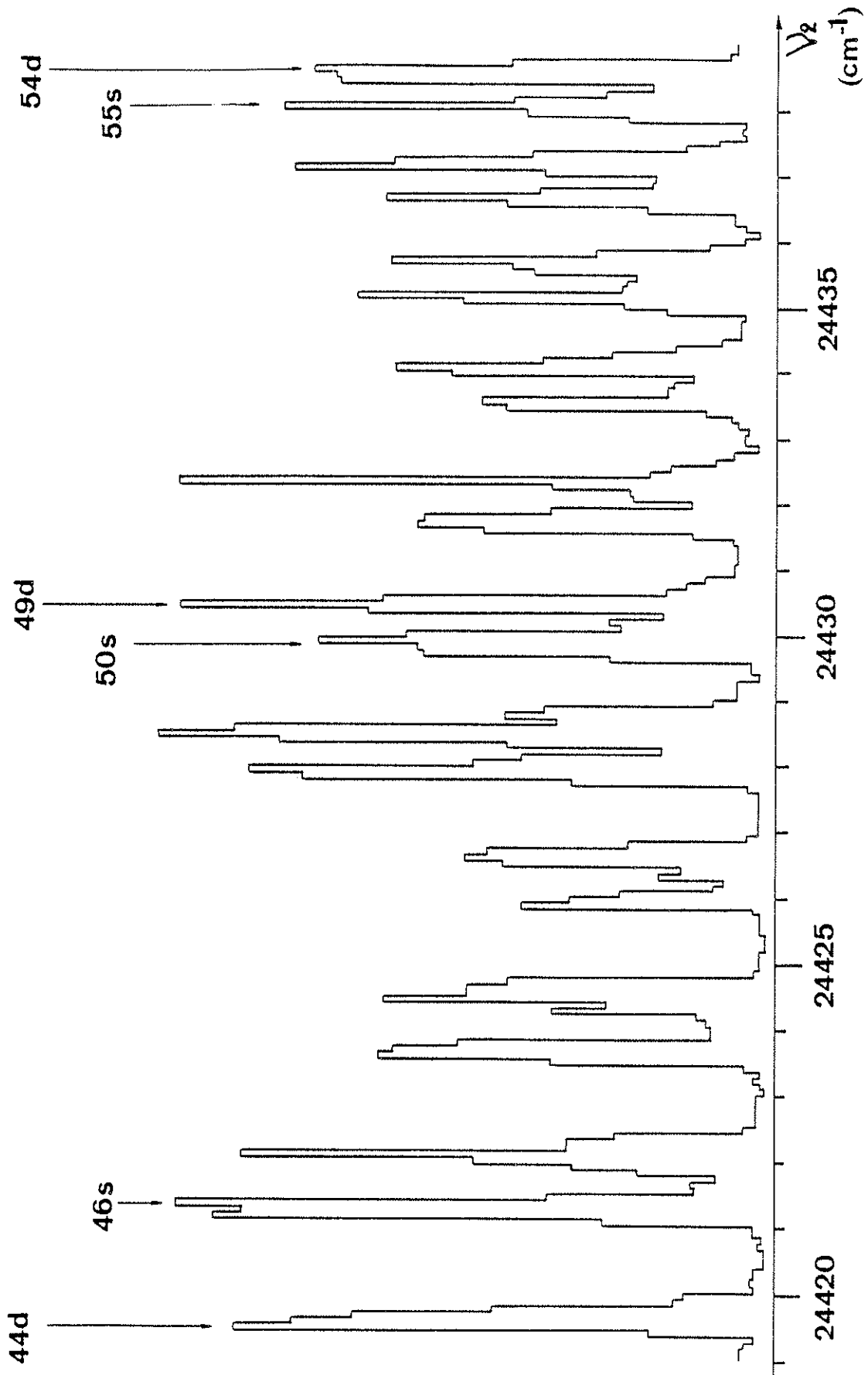


Figure 8

Observation des niveaux ns et nd du sodium donnant une idée de la largeur spectrale du laser excitateur. L'écart entre les niveaux 54d et 55s est de $0,5 \text{ cm}^{-1}$.

C - Le MONTAGE EXPERIMENTAL.

La figure 9 présente le schéma d'ensemble du montage expérimental.

Le jet atomique de sodium est le même que celui qui a été décrit dans la deuxième partie (photoionisation) et seule la région d'interaction a été modifiée ; elle sera décrite ultérieurement. Les atomes du jet interagissent avec les deux faisceaux laser au point M. A cet endroit l'épaisseur du jet atomique est d'environ 5 mm et sa densité de l'ordre de 10^7 atomes/cm³.

Les deux faisceaux laser sont colinéaires, perpendiculaires au jet atomique et se propagent en sens opposé. La lumière du premier faisceau laser de fréquence ν_1 (laser continu) est polarisée circulairement σ^+ par la lame quart d'onde L_1 . La lumière de fluorescence du jet atomique est détectée par un photomultiplicateur (P.M₁) et le signal de sortie sert à asservir la fréquence du laser sur la transition atomique ($3\ ^2S_{1/2}\ F=2 \rightarrow 3\ ^2P_{3/2}\ F'=3$). La lumière violette du laser pulsé de fréquence ν_2 est filtrée, puis polarisée, soit σ^+ , soit σ^- (par rapport à la direction du champ électrique \vec{E} indiqué sur la figure) à travers un parallélépipède de Fresnel ; elle est ensuite focalisée sur le jet atomique et forme à cet endroit un petit spot entièrement compris à l'intérieur du faisceau du laser continu (figure 10).

Un monochromateur à réseau et une raie de référence ($\lambda_{\text{air}} = 410,176\text{nm}$) de In I, émise par une lampe à décharge sans électrodes permettent de déterminer la fréquence ν_2 du rayonnement du laser pulsé. La longueur d'onde de la transition $3p - 34s$ étant très proche de la longueur d'onde de référence, le niveau $34s$ est facilement identifiable. Un balayage continu de la fréquence du laser permet d'identifier les autres niveaux sans ambiguïté. De plus, un choix convenable des polarisations des faisceaux lumineux excitateurs permet de distinguer les niveaux s des niveaux d ce qui facilite l'identification (voir §.suivant).

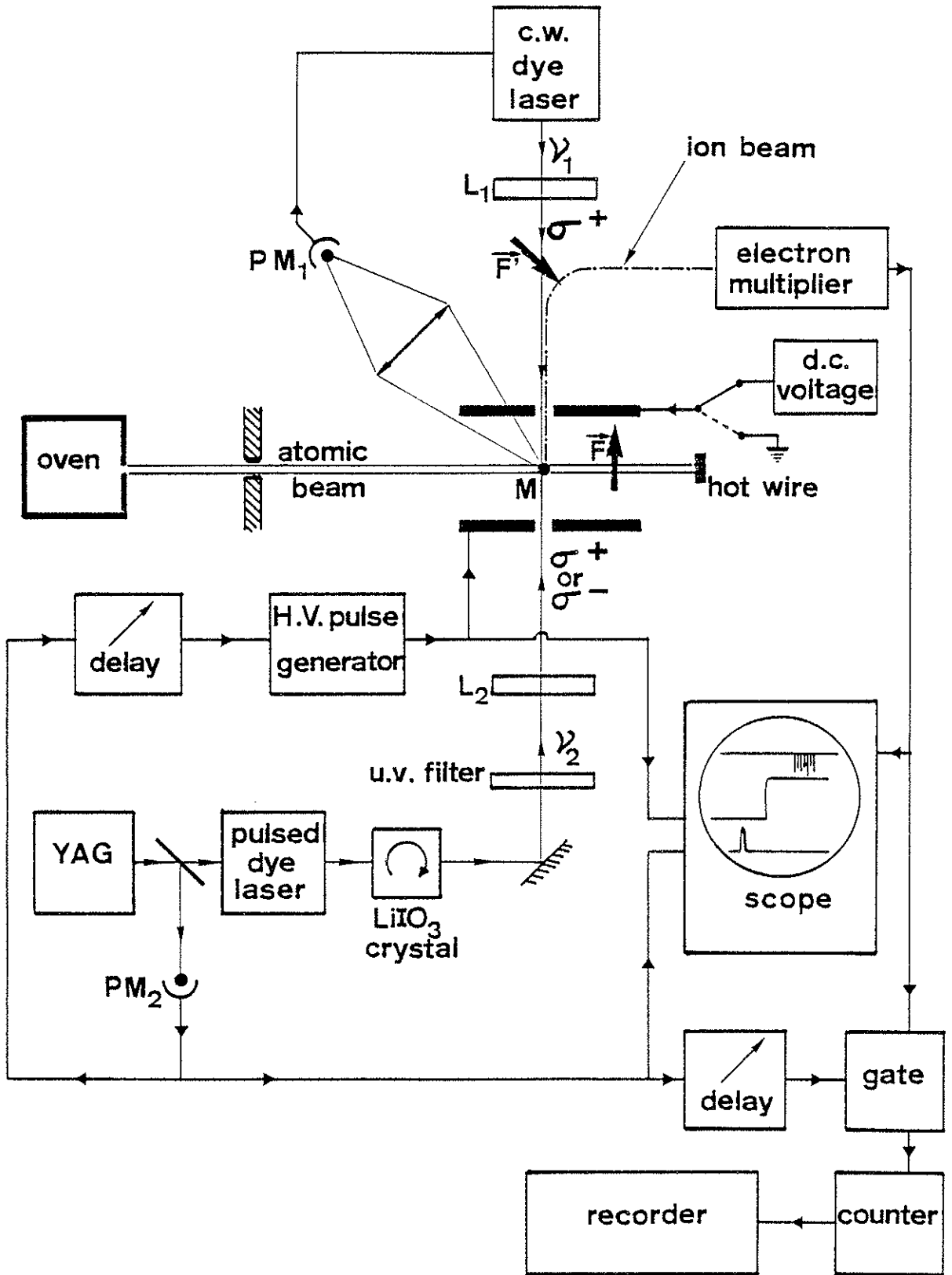


Figure 9

Schéma général du montage expérimental.

----- : trajectoire des ions.

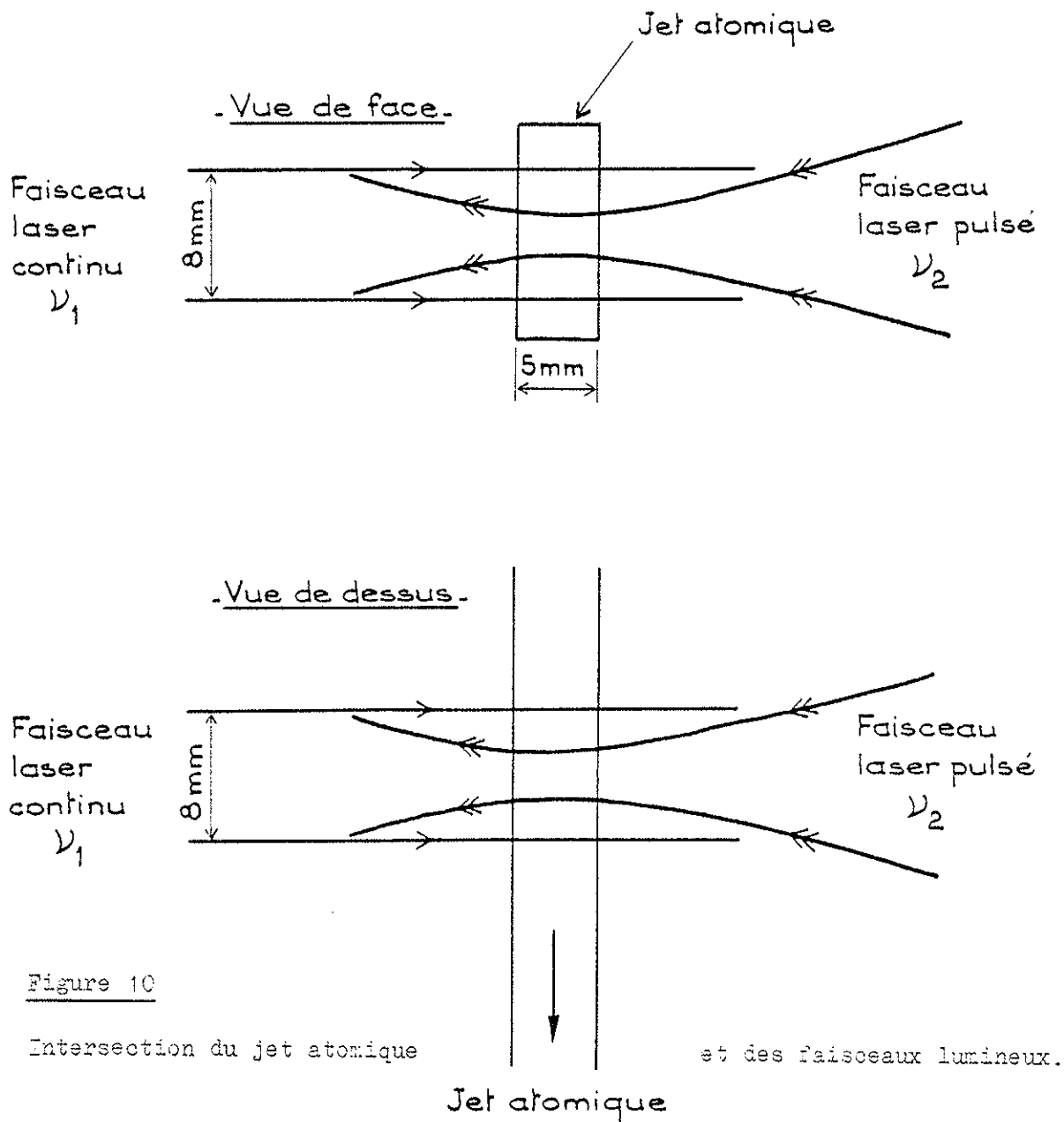


Figure 10

Intersection du jet atomique

et des faisceaux lumineux.

La région d'interaction avec la lumière est située entre les deux plaques métalliques d'un condensateur plan. Le champ électrique pulsé \vec{F} qui ionise les atomes est appliqué entre ces plaques. Il est déclenché, par les impulsions du laser YAG reçues sur le photomultiplicateur PM_2 , avec un retard d'une microseconde. De cette façon ce sont des états de Rydberg non perturbés que l'on atteint par excitation optique. Les atomes ionisés sont également accélérés par le champ \vec{F} et, par conséquent, leur trajectoire est très proche des faisceaux lumineux et parallèle à ces derniers. Un champ auxiliaire \vec{F}' permet de

défléchir les ions et de les envoyer sur la première dynode d'un multiplicateur d'électrons sans écranter les faisceaux lumineux. Les détails techniques de ce dispositif sont indiqués sur la figure 11.

Les armatures du condensateur entre lesquelles on applique le champ pulsé F sont notées P_1 et P_2 .

P_1 est une plaque métallique munie d'une grille également métallique en son centre pour permettre le passage des faisceaux lumineux ;

P_2 est une face d'un "prisme équipotentiel" obtenu en bobinant un fil métallique sur trois tiges filetées parallèles (perpendiculaires au plan de la figure).

P_1 et P_2 sont isolées électriquement de la masse et on peut leur appliquer des potentiels électriques V_1 et V_2 pour générer les champs \vec{F} désirés.

Une troisième plaque P_3 également munie d'une grille, parallèle à la face hypothénuse du prisme équipotentiel et isolée de la masse permet de créer le champ déflecteur F' par application d'une tension V_3 . Le tout fonctionne en quelque sorte comme un prisme à réflexion totale. Ce dispositif a été utilisé pour que le champ électrique ionisant \vec{F} soit parallèle à la direction des faisceaux laser, l'intérêt de cette géométrie est discuté dans le paragraphe qui suit (III-D).

Les impulsions de sortie du multiplicateur d'électrons sont observées sur l'écran d'un oscilloscope déclenché par les impulsions du laser NdYAG (via PM_2). On observe également le champ électrique pulsé \vec{F} . Il est possible d'observer ainsi le temps de vol des ions et leur dispersion, ce qui permet d'ajuster le retard et la largeur de la porte du système de comptage. Nous reviendrons en détail au paragraphe III-F sur le système de comptage à porte et les différentes formes de champ électrique pulsé utilisées.

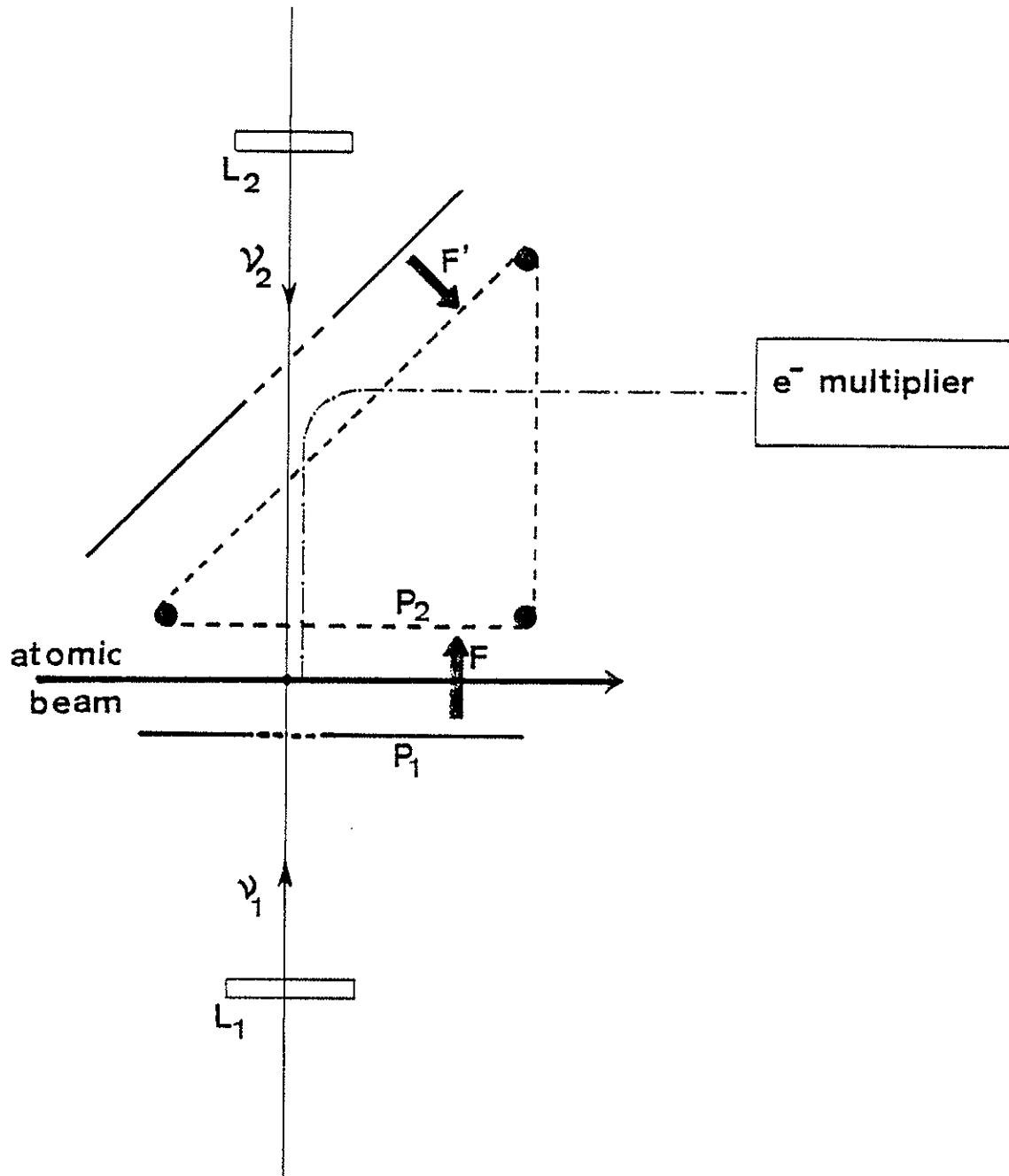


Figure 11

Schéma détaillé
de la région d'interaction.

Pour chaque mesure les ions sont comptés pendant une durée réglable (environ 10 secondes) fixée par une horloge interne du compteur. Le compteur fournit en fin de séquence un signal électrique proportionnel au nombre d'ions comptés pendant cette séquence. Ce signal est enregistré sur un enregistreur à plume tandis qu'une nouvelle séquence de mesure démarre.

D - CHOIX des POLARISATIONS LUMINEUSES.

\vec{L} , \vec{S} et \vec{J} sont les moments angulaires orbital, de spin et total et m_L , m_S et m_J leurs projections respectives suivant la direction du champ électrique \vec{F} . Le but de cette expérience est d'étudier les seuils d'ionisation par champ pour les niveaux de Rydberg et, dans le cas des niveaux nd , séparément pour chaque valeur possible de $|m_L|$. On peut tirer profit du pompage optique Zeeman dans le premier étage de l'excitation optique pour sélectionner une valeur de m_L déterminée dans l'état de Rydberg atteint.

Comme indiqué sur la figure 12, le rayonnement lumineux qui induit la transition correspondant au premier étage, de fréquence ν_1 , est toujours polarisé σ^+ par rapport à la direction du champ \vec{F} . Comme cela a déjà été dit dans la deuxième partie de cet exposé (photoionisation) à cause du pompage optique Zeeman le sous-niveau Zeeman $F=3$, $m_F=3$ devient rapidement le seul sous-niveau peuplé de l'état intermédiaire $3^2P_{3/2} F=3$ [68] et les atomes qui interagissent avec le rayonnement du laser pulsé sont donc "préparés" dans ce sous-niveau. Or, pour ce sous-niveau particulier, m_L et m_J sont de bons nombres quantiques et restent égaux respectivement à $+1$ et $+3/2$.

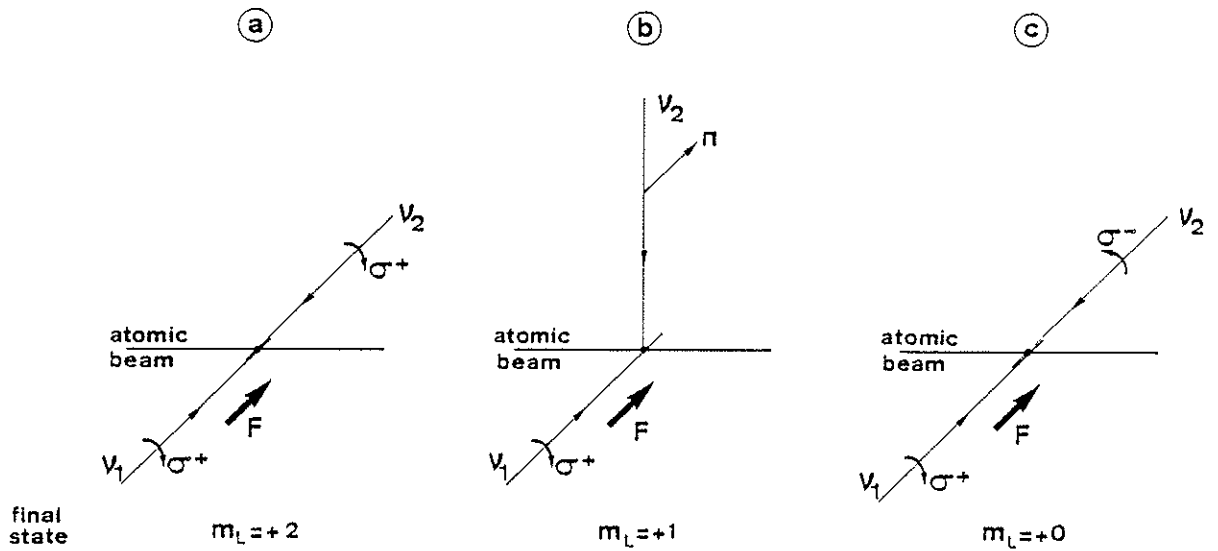


Figure 12

Les trois différentes géométries possibles
pour l'excitation optique à deux étapes.
Les états de Rydberg que l'on peut atteindre
ont une valeur de m_L déterminée

- (a) $m_L = 2$
- (b) $m_L = 1$
- (c) $m_L = 0$

La direction de propagation et la polarisation du second faisceau laser (rayonnement pulsé de fréquence ν_2) peuvent être choisies parmi les trois possibilités indiquées sur la figure 2.

Une excitation σ^+ (fig. 12a), π (fig. 12b) ou σ^- (fig. 12c) conduiront respectivement à des états hautement excités pour lesquels m_L vaudra 2, 1 ou 0 respectivement.

Comme conséquence immédiate, si le second étage de l'excitation optique est polarisé σ^+ (cas a) seuls les niveaux de Rydberg nd peuvent être atteints, par contre avec une polarisation σ^- (cas c) les niveaux ns et nd peuvent être excités. Ceci est illustré sur la figure 15 où les signaux obtenus avec ces deux polarisations et pour la même plage de fréquence peuvent être comparés. Les pics correspondant aux niveaux ns n'apparaissent que dans l'enregistrement (c) (correspondant à la géométrie de la figure 12c), alors que ceux correspondant aux niveaux nd apparaissent dans les deux enregistrements (a) et (c). Cet effet, en nous permettant de distinguer entre les niveaux s et d, rend l'identification de ceux-ci plus facile. La géométrie de la figure 9 correspond aux cas a et c de la figure 12. L'excitation optique représentée sur la figure 12b est obtenue en envoyant le rayonnement du laser pulsé sur le jet atomique, à travers un autre hublot de l'appareil, perpendiculairement au plan de la figure 9 et polarisé linéairement et parallèle à \vec{F} .

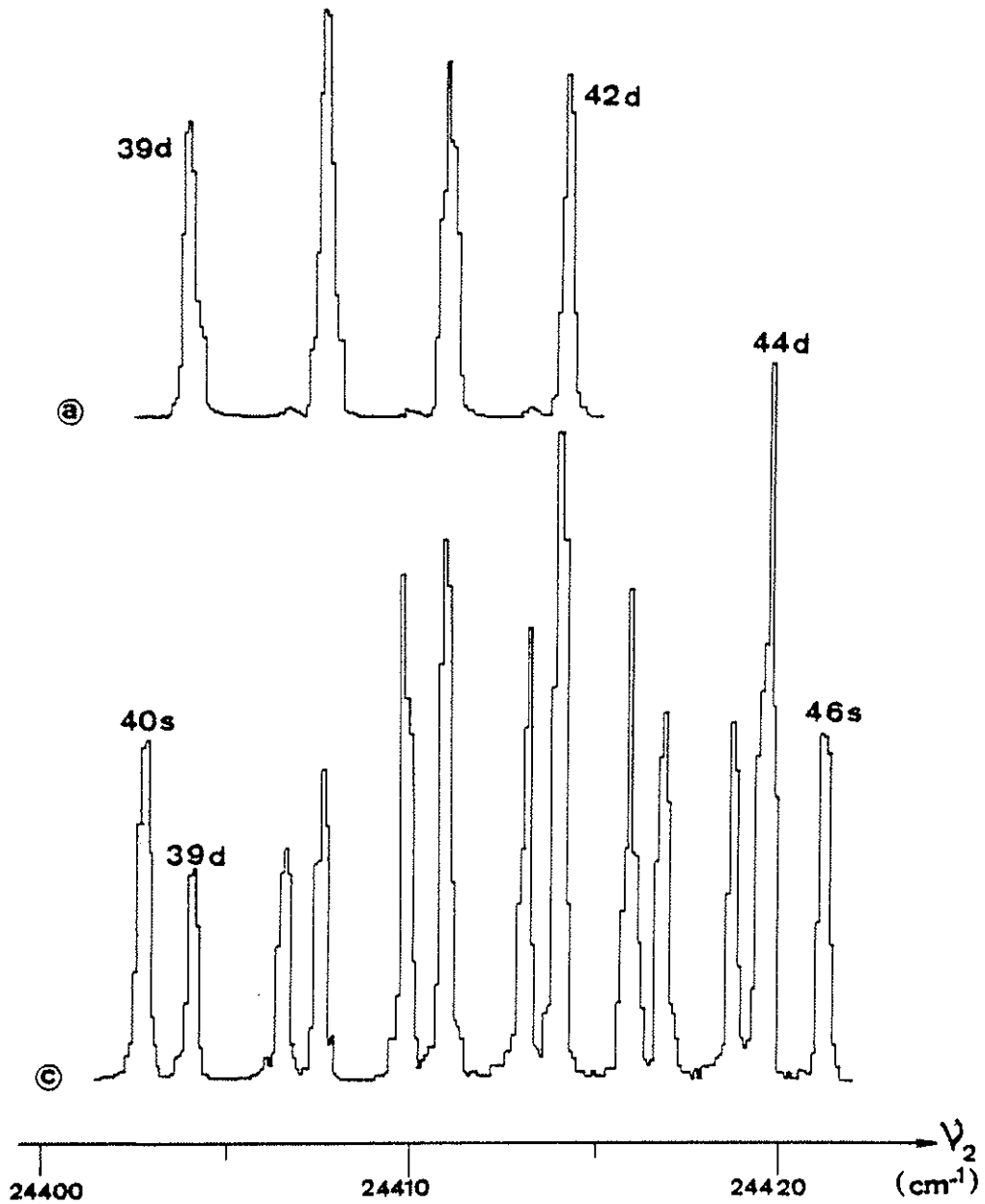


Figure 13

Enregistrement du signal d'ions
en fonction de la fréquence du laser pulsé.

- (a) L'excitation optique correspond au cas de la figure 2-a et les états atteints sont des états pour lesquels $m_L = +2$. Seuls les niveaux d sont présents.
- (c) L'excitation optique correspond au cas de la figure 12-c et pour les états excités atteints $m_L = 0$. Les deux séries nd et ns sont présentes.

E - OBSERVATION des ETATS n_p .

Si un petit champ électrique continu est appliqué entre les plaques du condensateur pendant l'interaction optique, on peut observer les niveaux n_p . Le champ électrique produit en effet un mélange Stark qui permet l'excitation directe des niveaux n_p depuis le niveau $3p$. De plus, comme les défauts quantiques sont très faibles pour les états $n\ell$ avec $\ell \gg 2$ dans le sodium, ces niveaux sont très fortement mélangés même aux faibles amplitudes de champ électrique continu utilisées. La figure 14 présente un enregistrement typique. Les états p et s apparaissent sous forme de pics étroits tandis que le pic correspondant à un état nd est remplacé par un signal plus large correspondant à de nombreux niveaux Stark voisins de la multiplicité n . Pour chaque état n_p étudié, l'amplitude du champ continu doit être ajustée. Il faut un champ suffisamment fort pour obtenir un pic aussi grand que possible et un champ suffisamment faible pour que ce pic soit bien résolu. Pour l'enregistrement de la figure 14, la géométrie des faisceaux lumineux qui a été utilisée est celle de la figure 12c . Par conséquent les états atteints sont des états $m_L = 0$ et les niveaux n_s sont observés.

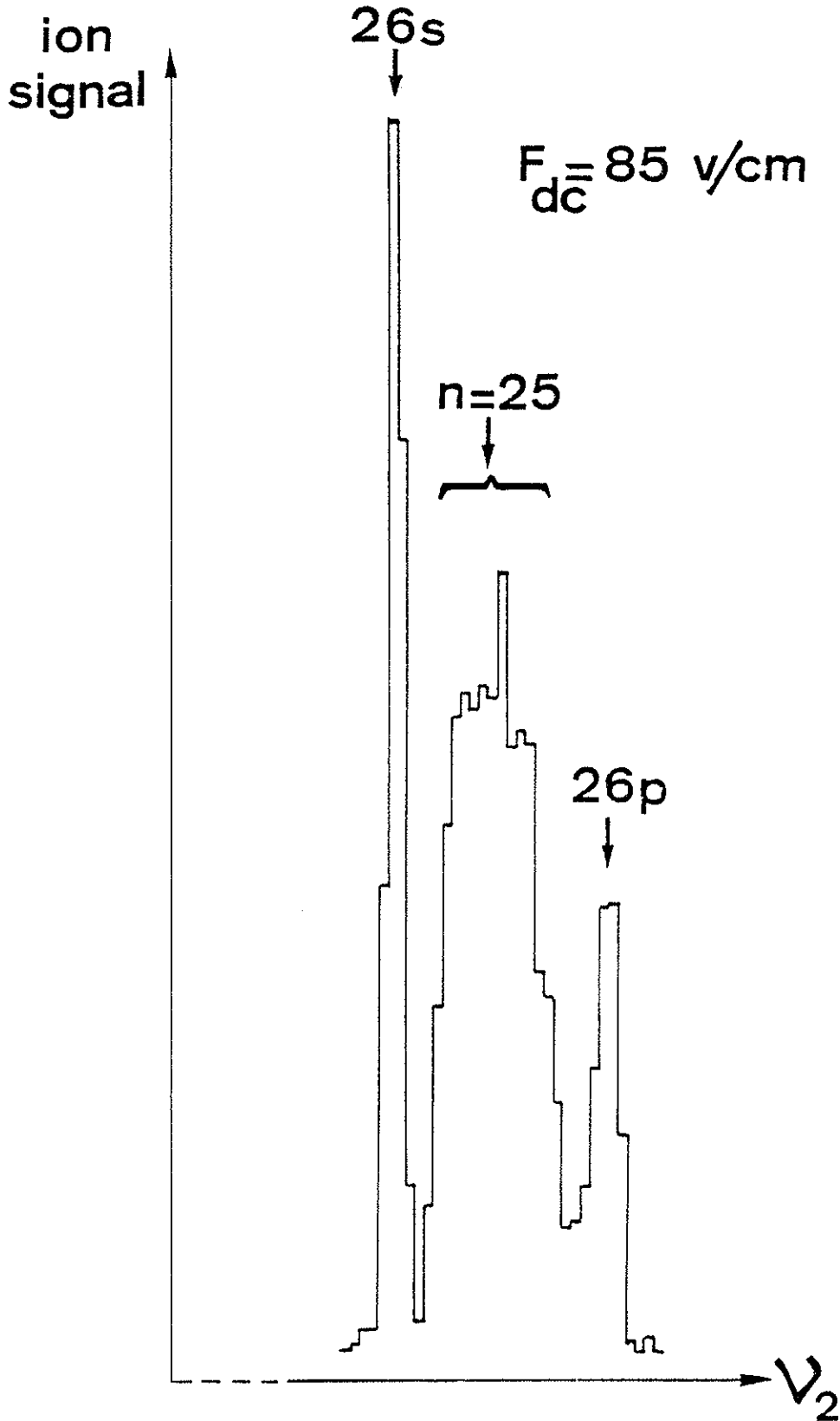


Figure 14

Enregistrement du signal d'ions en fonction de la fréquence du laser pulsé. Un champ électrique F_{dc} permet, par mélange Stark, de peupler les états np .

F - Le CHAMP ELECTRIQUE PULSE et le SYSTEME de
COMPTAGE à PORTE.

Les fréquences des rayonnements laser sont choisies pour peupler un niveau de Rydberg donné et sont maintenues fixes. Un champ électrique pulsé permet d'ioniser les atomes portés dans cet état de Rydberg et les ions produits sont comptés en fonction de l'amplitude du champ électrique pulsé.

Deux dépendances en temps ont été utilisées pour le champ électrique pulsé ; elles sont présentées sur la figure 15 (A et B).

Dans le cas A , l'impulsion de champ électrique a un temps de montée rapide et un sommet à peu près plat. Le temps de montée peut être choisi dans la plage $[0,2 \mu\text{s} - 1 \mu\text{s}]$. La porte du compteur (temps d'ouverture $\tau = 1 \mu\text{s}$) permet de ne compter que les ions produits pendant la première microseconde après que le champ électrique ait atteint sa valeur maximale. Le retard réglable D_1 permet de tenir compte du temps de vol des ions. Pour un état non dégénéré, comme on s'attend à ce que la vitesse d'ionisation varie très rapidement avec l'amplitude du champ électrique, la courbe représentant le nombre d'ions détectés en fonction du champ électrique F doit avoir l'allure indiquée sur la figure 15 (A) : Il apparaît un seuil d'ionisation très bien défini ($\frac{\delta F}{F_c} \ll 1$) et à la valeur F_c du champ électrique la vitesse d'ionisation des atomes est à peu près $\frac{1}{\tau} = 10^6 \text{ s}^{-1}$. Lorsqu'un état de Rydberg, à cause de sa dégénérescence par exemple, présente plusieurs seuils d'ionisation différents, la courbe enregistrée doit présenter plusieurs paliers (fig. 15A) comme ceci a été observé par GALLAGHER [80]. Avec cette forme de champ pulsé, les seuils d'ionisation successifs sont de plus en plus difficiles à observer à mesure que le champ augmente. En effet, l'observation d'un seuil d'ionisation donné est

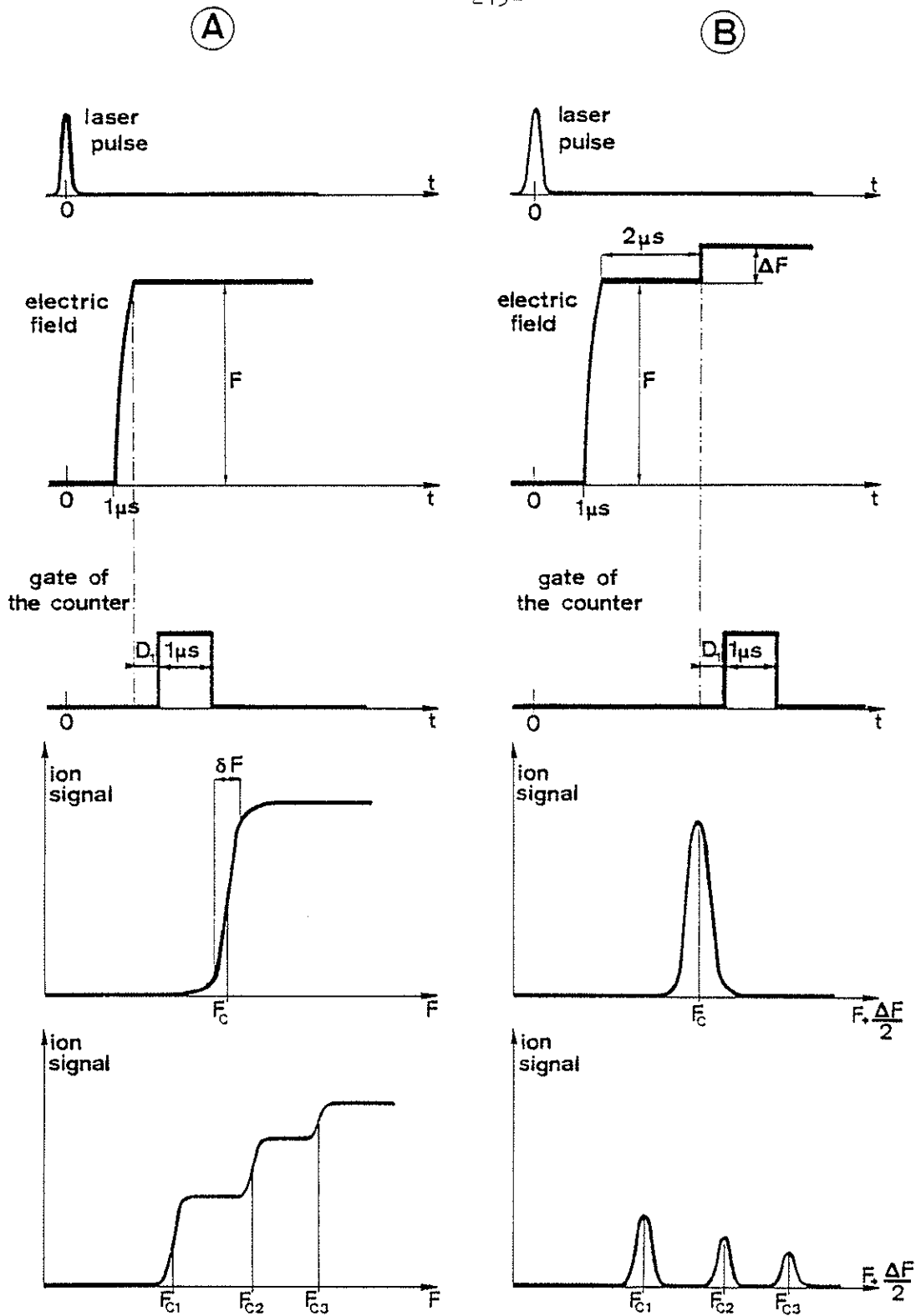


Figure 15

Dépendance en temps du champ électrique pulsé et du système de comptage à porte pour les deux méthodes utilisées dans cette expérience.

Les courbes que l'on attend, dans chaque cas, pour les signaux d'ions en fonction de l'amplitude du champ électrique pulsé sont également indiquées sur la figure.

rendue difficile par le fond et le bruit qui lui est associé, dus aux seuils inférieurs.

Nous avons modifié la forme du champ électrique de façon à étudier ces seuils multiples avec un meilleur rapport signal sur bruit. Ces modifications sont indiquées sur la figure 15(B). La dépendance en temps du champ électrique est indiquée sur la figure. L'augmentation ΔF de l'amplitude du champ est très faible ($\frac{\Delta F}{F} < 0,02$), elle reste constante tandis que l'on fait varier F . La porte du compteur permet de compter les ions produits pendant la première microseconde après que $F + \Delta F$ ait été appliqué. Le retard réglable D_1 permet de tenir compte du temps de vol des ions. Pour un état non dégénéré ayant un seul seuil d'ionisation F_0 (défini comme précédemment : le champ nécessaire pour avoir une vitesse d'ionisation de 10^6 s^{-1}), les ions sont produits et comptés uniquement lorsque les atomes sont ionisés par $F + \Delta F$ en une microseconde sans avoir été ionisés auparavant par F en deux microsecondes (figure 15). Par conséquent la courbe en palier de la figure 15A se transforme en un signal présentant le forme d'un pic sur un fond nul (figure 15B).

ΔF est choisi aussi faible que possible pour obtenir des pics étroits sans trop réduire leur amplitude. Le maximum de signal est obtenu pour un champ électrique F tel que $F_0 \approx F + \frac{\Delta F}{2}$; par conséquent si le signal d'ions est porté en fonction de $F' = F + \frac{\Delta F}{2}$, le centre du pic correspond à $F' = F_0$ (avec la définition de F_0 donnée plus haut).

Dans le cas des seuils multiples, le signal d'ions porté en fonction de l'amplitude du champ électrique donne une courbe présentant plusieurs pics, chaque pic correspondant à un seuil d'ionisation. La forme de champ électrique indiquée sur la figure 15B est obtenue de la façon suivante (voir figure 16) :

1 μ s après l'impulsion laser un créneau de haute tension V_1 est appliqué à la plaque P_1 du condensateur.

Un petit créneau de tension V_2 est appliqué à la plaque P_2 avec un retard plus grand (3 μ s).

Le champ qui en résulte entre les plaques P_1 et P_2 a la dépendance temporelle convenable.

Une tension continue permanente peut être ajoutée au potentiel de la plaque P_2 pour permettre l'excitation des niveaux np par mélange Stark.

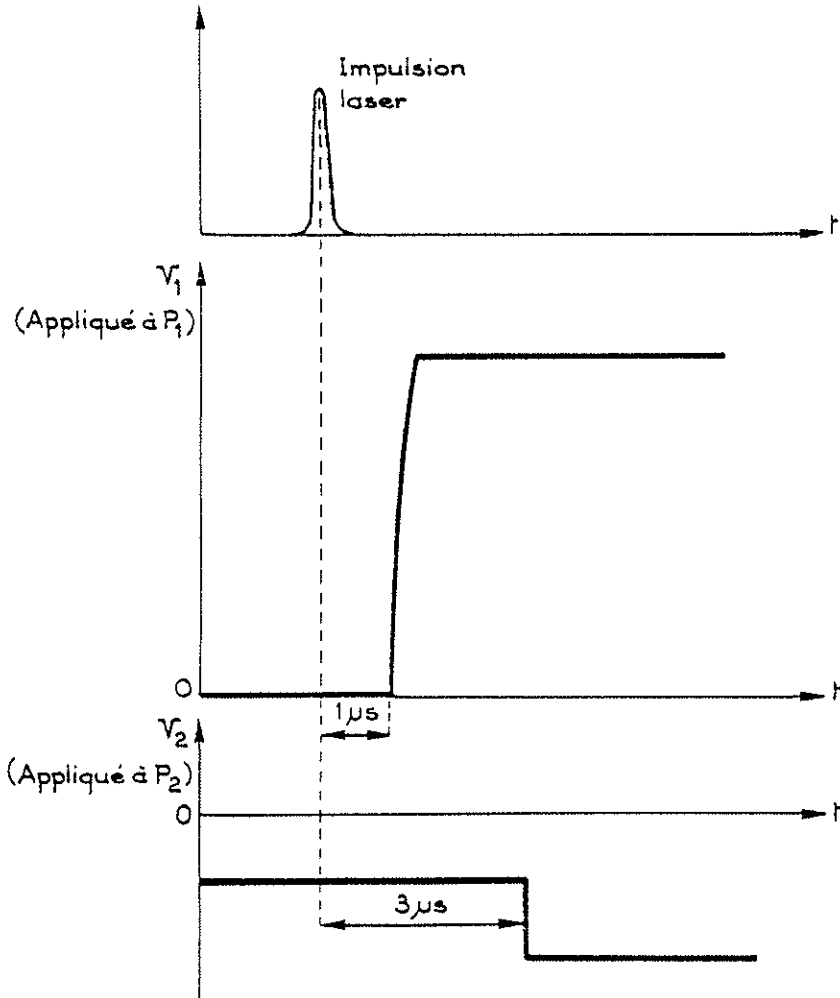


Figure 16 : Dépendance en temps des tensions appliquées aux plaques du condensateur pour créer le champ ionisant \vec{F} .

IV - RESULTATS EXPERIMENTAUX.
MESURE DES SEUILS D'IONISATION.

A - RESULTATS sur les ETATS ns .

Les seuils d'ionisation ont été mesurés pour tous les états ns de $n=22$ à $n=50$.

Puisqu'un état s est un état non dégénéré, on s'attend à ce qu'il présente un seul seuil pour un champ critique F_c bien défini. Pour cette raison, la dépendance en temps du champ électrique pulsé de la figure 15(A) a été choisie. Pour chaque état s étudié, la courbe représentant le nombre d'ions comptés en fonction de l'amplitude du champ électrique pulsé présente un seuil très abrupt, comme attendu. Des enregistrements typiques obtenus pour plusieurs états ns sont reproduits sur la figure 17. La détermination expérimentale du champ critique F_c pour chaque état ns est également indiquée sur la figure par une flèche. Il a été possible de mesurer F_c pour chaque état ns avec une précision de 5% . Cette incertitude est due pour moitié à la détermination de l'espacement entre les deux plaques du condensateur et pour moitié à la détermination de l'amplitude crête des potentiels électriques pulsés par lecture sur un oscilloscope ainsi qu'à la détermination graphique de F_c sur les courbes expérimentales. Plusieurs espacements différents ont été utilisés (1,20 , 1,36 et 3,00 cm) suivant

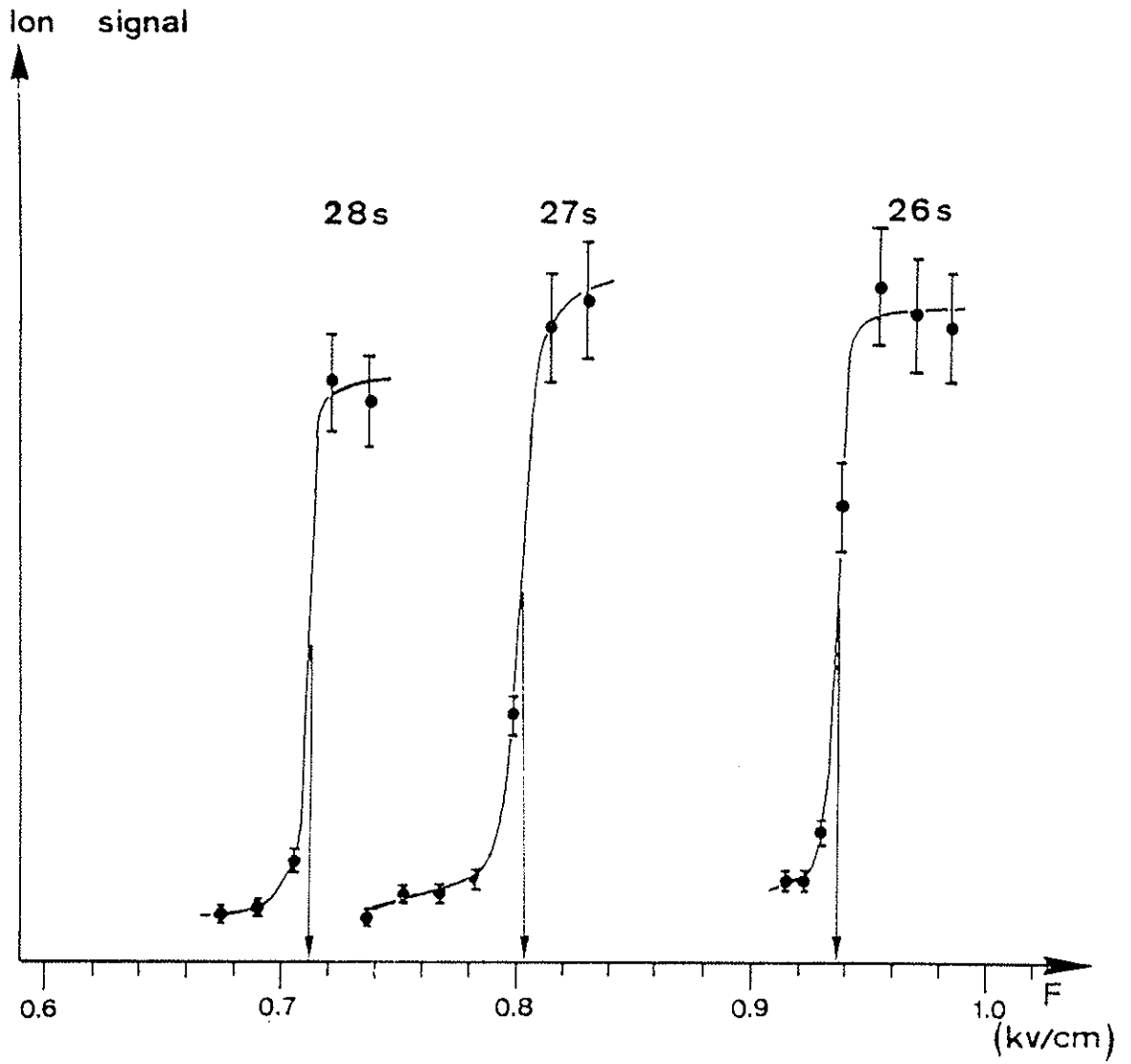


Figure 17

Signaux d'ions en fonction de l'amplitude
du champ électrique pulsé obtenus par la méthode
de la figure 15(A) pour plusieurs états s .

Les valeurs des champs critiques F_c
sont indiquées par des flèches.

la valeur du champ pulsé que l'on désirait obtenir. Les mesures effectuées avec ces différents espacements sur un même état ont toujours donné des résultats compatibles entre eux. On peut comparer les valeurs de F_c ainsi déterminées expérimentalement aux valeurs théoriques F_{cth} prévues par le modèle élémentaire dont il a été question au paragraphe II

$$F_{cth} = \frac{E^2}{4} = \frac{1}{16(n^*)^4}$$

Les valeurs de F_c étant exprimées en unités atomiques, on a porté sur la figure 18 les valeurs du rapport

$$\frac{F_c}{F_{cth}} = F_c (2n^*)^4 \quad \text{en fonction de } n^* .$$

Les valeurs de n^* utilisées pour les états ns sont celles qui ont été données par DUCAS et al. [75].

Il apparaît clairement, sur la figure, que les valeurs expérimentales sont toujours légèrement supérieures aux valeurs théoriques attendues. Le rapport $\frac{F_c}{F_{cth}}$ reste à peu près constant aux erreurs de mesure près pour tous les états ns étudiés. La valeur moyenne de ce rapport est environ 1,08 et F_c peut d'écrire pour tous les états ns

$$F_c (ns) \approx 1,08 \times \frac{1}{16(n^*)^4} .$$

Ce résultat n'est pas en très bon accord avec les résultats antérieurs de DUCAS, LITTMAN, FREEMAN et KLEPPNER [75] qui ont trouvé un écart plus grand à la loi $\frac{1}{16(n^*)^4}$ dans le cas des niveaux ns du sodium ($n=26$ à $n=37$). Mais les incertitudes des deux mesures rendent les résultats compatibles.

L'accord n'est pas non plus excellent avec les résultats de DUCNG, LIBERMAN et PINARD [17] qui, eux, ont trouvé que la loi $F_{cth} = \frac{1}{16(n^*)^4}$ était très bien vérifiée pour les états de Rydberg du rubidium.

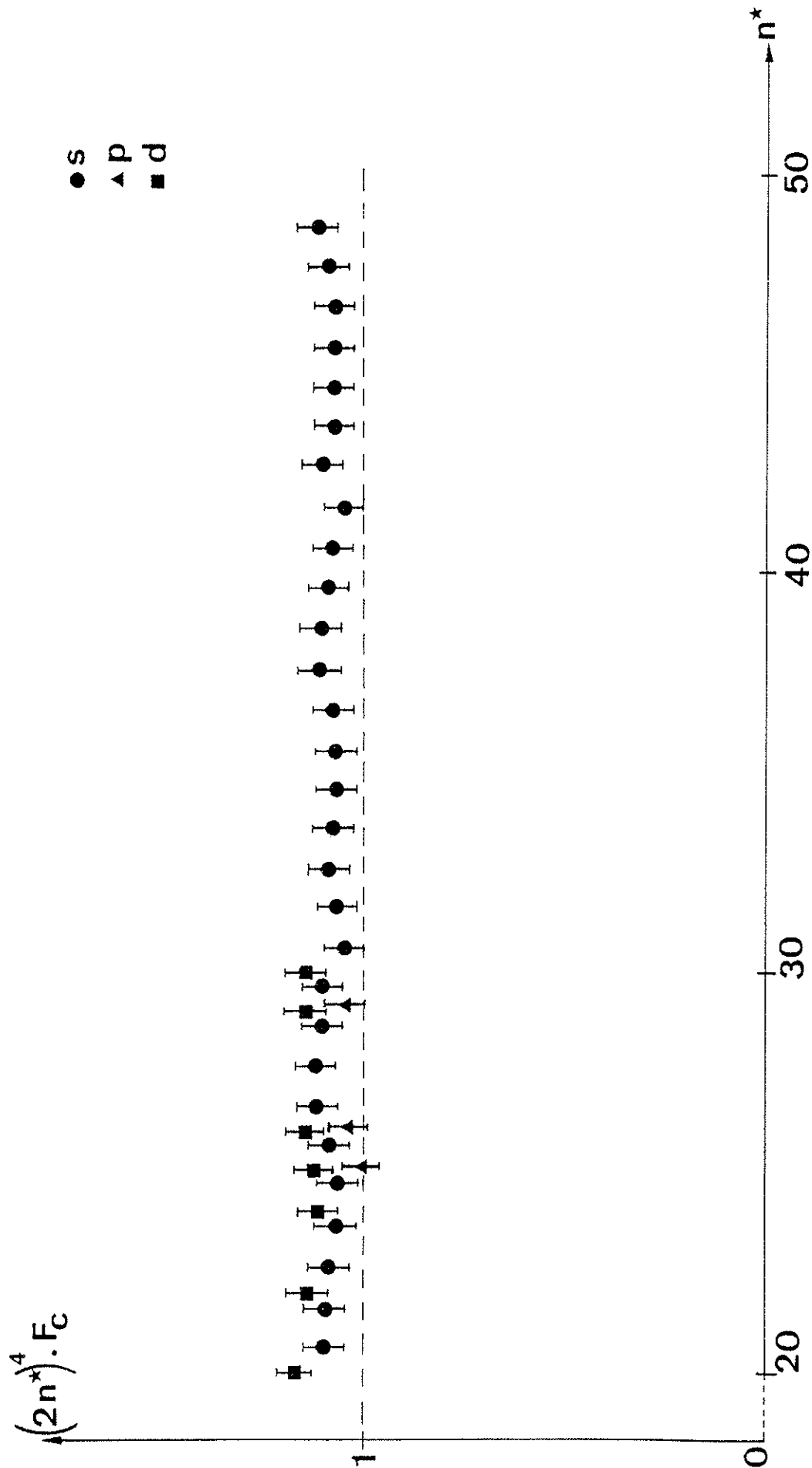


Figure 18

Comparison, pour les états ns, np et nd du sodium étudiés dans cette expérience, des champs critiques F_c observés

correspondant aux seuils d'ionisation les plus bas et de la loi classique $F_{cth} = \frac{1}{16(n^*)^4}$

Il faut noter que ce résultat a été obtenu en adoptant pour le champ critique F_c une définition légèrement différente de la définition utilisée ici ; si l'on adopte la définition de ces auteurs pour F_c (valeur du champ électrique au commencement du seuil et non à mi-hauteur), il faut légèrement diminuer les valeurs obtenues pour F_c (environ 2%) ce qui réduit d'autant le désaccord entre la loi $(16n^{*4})^{-1}$ et les valeurs expérimentales, le désaccord (6%) devenant alors très comparable à l'incertitude sur les mesures (5%).

L'ionisation par un champ électrique des états n_s a aussi été étudiée en utilisant la forme de champ électrique de la figure 15(B), de façon à tester la nouvelle méthode proposée précédemment (paragraphe III). On s'attend à ce que la courbe représentant le signal d'ions en fonction de l'amplitude du champ électrique présente un seul pic. Nous avons étudié de cette façon les états n_s de $n=22$ à $n=31$. Dans la plupart des cas le signal d'ions ne comprend en effet qu'un seul pic, mais pour certains états n_s , $n = 25, 26$ et 27 en particulier, nous avons observé plusieurs pics successifs. Trois courbes enregistrées sont données à titre d'exemple sur la figure 19. Il faut noter que les pics correspondant aux seuils supérieurs sont toujours plus faibles que celui correspondant au seuil le plus bas. Ceci suffit à expliquer pourquoi ces seuils supérieurs n'étaient pas visibles dans les premières expériences qui utilisaient le champ électrique pulsé de la figure 15A, cette méthode n'étant pas assez sensible. Pour tous les états étudiés, le seuil le plus bas observé avec cette méthode correspond au seuil qui avait été mesuré avec la première méthode et les valeurs numériques obtenues sont compatibles à la précision des mesures.

Tous les seuils observés pour les différents états n_s étudiés sont regroupés dans le Tableau I.

Aucune différence n'a été observée pour ces seuils multiples lorsque l'on fait varier le temps de montée entre $0,2 \mu s$ et $1 \mu s$. Si les seuils multiples observés sont la conséquence d'un passage partiellement

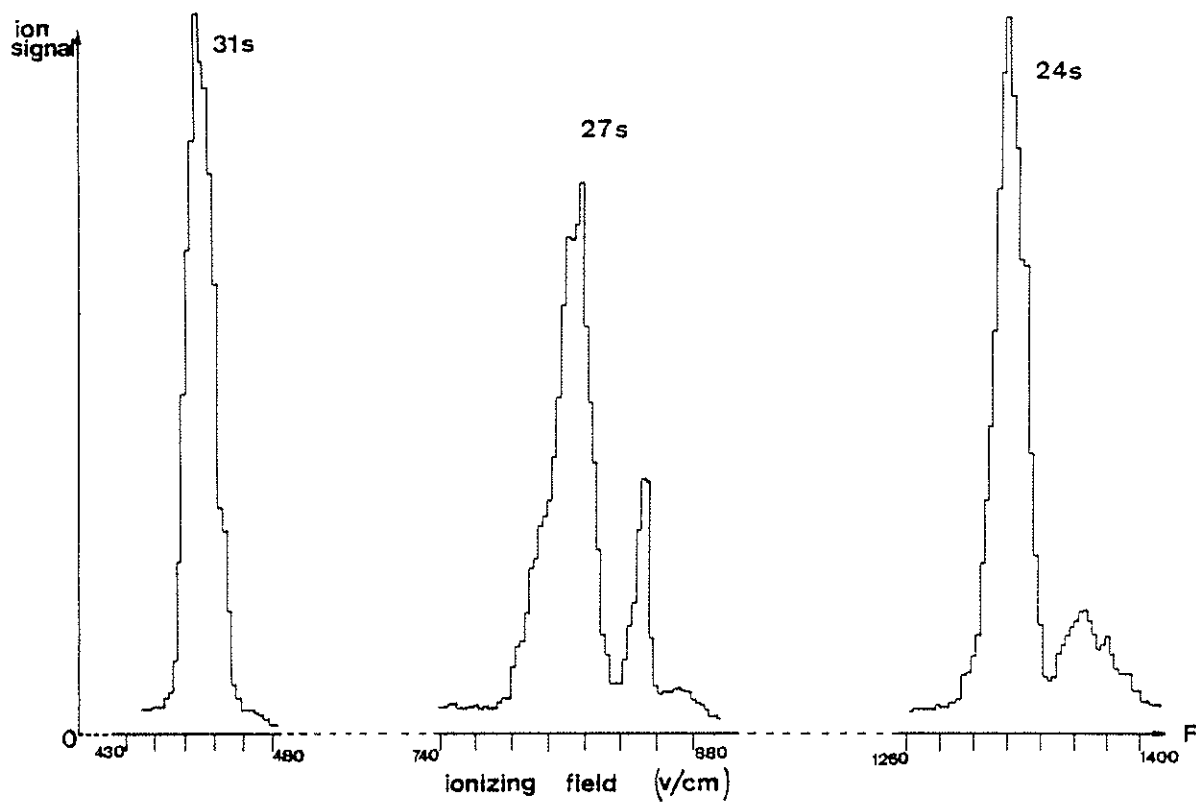


Figure 19

Signaux d'ions en fonction de l'amplitude
du champ électrique pulsé obtenus avec la méthode
de la figure 15(B) pour trois états ns. Remarquer
la présence de plusieurs pics, par exemple pour l'état 27s .

TABLERAU I

Seuils d'ionisation pour les états ns du sodium
(vitesse d'ionisation de 10^6 s^{-1})

Les valeurs des champs critiques sont données en kV/cm à $\pm 5\%$ près.

| n | 22 | 23 | 24 | 25 | 26 | 27 | 28 | 30 | 31 |
|------------------|------|-------|-------|------|--------|-------|-------|-------|-------|
| F_c (kV/cm) | 1,95 | 1,60 | 1,32 | 1,10 | 0,933 | 0,813 | 0,714 | 0,523 | 0,457 |
| | | 1,67* | 1,37* | 1,15 | 0,966 | 0,850 | | | |
| | | | | | 0,996* | | | | |

* Les pics correspondant à ces seuils sont très faibles.

diabatique de l'atome de champ nul en champ électrique fort, comme cela a été proposé par GALLAGHER, ils devraient dépendre du temps de montée du champ électrique pulsé. Il est malheureusement impossible de faire varier ce temps de montée sur une plage suffisamment large pour voir si cet effet existe, ou non.

Par ailleurs la proposition faite par GALLAGHER pour expliquer les seuils multiples pour des états non dégénérés par un passage partiellement diabatique se justifiait dans la mesure où il avait observé ces seuils multiples sur des états $|m_L| = 2$. Comme il a été dit au paragraphe II, pour ces états la possibilité de passage partiellement diabatique n'est pas exclue ; elle semble beaucoup plus improbable par contre pour des états $|m_L| = 0$ qui se repoussent fortement. Le fait que nous ayons observé le même genre de seuils multiples pour des états ns, donc pour des états pour lesquels $|m_L| = 0$ semble infirmer l'explication avancée par GALLAGHER et l'origine de ces seuils multiples reste un problème à éclaircir.

B - RESULTATS sur les ETATS nd et np .

Puisque l'on s'attend à ce que les états d, à cause de leur dégénérescence, présentent plusieurs seuils, le champ électrique qui a été utilisé est celui représenté sur la figure 15B. Tous les champs critiques observés pour les états nd étudiés sont regroupés dans le Tableau II.

Il faut maintenant revenir plus en détail sur le fonctionnement de l'excitation optique des états d. Chaque état d étudié

TABEAU II

Seuils d'ionisation dans les états np et nd du sodium
(vitesse d'ionisation de 10^6 s^{-1})

Les valeurs des champs critiques sont données à $\pm 5\%$ et exprimées en kV/cm.

| Etats | 20d | 22d | 24d | 25d | 26d | 29d | 30d | 26p $ m_L = 0$ | 27p $ m_L = 0$ | 30p $ m_L = 0$ |
|---------|-------|-------|---------------|--------|-----------------|-------|-------|--------------------|--------------------|--------------------|
| F_c | 2,33 | 1,58 | 1,09 | 0,926 | 0,811 | 0,520 | 0,458 | 0,808 | 0,712 | 0,465 |
| (kV/cm) | 2,48 | 1,68 | 1,14 | 0,953 | 0,842 | 0,545 | 0,466 | 0,845 | 0,734 | |
| | 2,54 | 1,75* | 1,17* | 0,970 | 0,865 | | 0,477 | | | |
| | 2,66 | | | 0,953* | (0,895-0,970)** | | | | | |
| | 2,76* | | (1,23-1,30)** | 1,01 * | 1,01 * | | | | | |

* Les pics correspondant à ces seuils sont très faibles.

** Large signal d'ions probablement dû à plusieurs pics adjacents non résolus.

(20d - 30d) possède une structure fine dont l'intervalle ν_{fs} est probablement compris entre 12 MHz et 3 MHz (résultat obtenu par extrapolation des mesures de FABRE, GROSS et HAROCHE [85]).

La largeur spectrale du rayonnement laser ($0,3 \text{ cm}^{-1}$) permet de couvrir largement cette structure ; la durée de l'impulsion laser (largeur à mi-hauteur) est d'environ 100 ns, ($\tau = 100 \text{ ns}$) et la forme de l'impulsion ne présente pas de front de descente particulièrement brusque. Dans ces conditions l'inégalité $\nu_{fs} \cdot \tau \ll \frac{1}{2\pi}$, qui est nécessaire pour avoir excitation cohérente des deux niveaux de structure fine $d_{3/2}$ et $d_{5/2}$, n'est jamais satisfaite puisque l'on a

$$\nu_{fs} \cdot \tau > 3 \times 10^6 \times 10^{-7} = 0,3$$

Les deux niveaux de structure fine $d_{3/2}$ et $d_{5/2}$ sont donc peuplés de façon incohérente.

Nous avons vu dans le chapitre précédent (III, La Méthode Expérimentale) que le sous-niveau Zeeman $F'=3 \ m_{F'}=3$ était le seul sous-niveau peuplé optiquement du niveau intermédiaire $3 \ ^2P_{3/2}$. Pour ce sous-niveau m_L et m_J sont tous les deux de bons nombres quantiques et valent respectivement +1 et +3/2. La polarisation (σ^+ , π ou σ^-) du rayonnement qui induit le deuxième étage de l'excitation optique (laser pulsé) détermine la valeur de m_J (respectivement +5/2, +3/2 ou +1/2) de l'état de Rydberg nd excité.

L'excitation optique sélectionne les états $|J, m_J\rangle$ ayant une valeur de m_J déterminée. Par ailleurs, le champ magnétique terrestre, dans la région d'interaction, n'est pas parallèle au champ électrique \vec{E} et les atomes excités précessent autour de la direction de ce champ magnétique pendant 1 μs (retard du champ électrique par rapport à l'impulsion laser). Cet intervalle de temps n'est pas petit devant

$\frac{1}{2\pi\nu_L}$ (ν_L fréquence de Larmor). Par conséquent, au moment de l'application du champ électrique pulsé la sélection d'une valeur de m_J déterminée a été détruite ; toutes les valeurs possibles de $|m_J|$ sont présentes dans l'état excité et, par conséquent, toutes les valeurs possibles de $|m_L|$ quelles que soient les polarisations initiales des faisceaux lumineux.

Pour cette raison, la dépendance en $|m_L|$ des seuils d'ionisation n'est pas indiquée dans le Tableau II.

On peut s'affranchir de ces difficultés en appliquant un champ continu permanent F_{dc} de même direction que le champ électrique pulsé. L'amplitude de ce champ continu est choisie suffisamment forte pour que l'effet Stark soit plus important que l'interaction de structure fine ; $|m_L|$ est alors un bon nombre quantique pour les atomes hautement excités et l'excitation optique sélectionne des états excités avec une valeur de $|m_L|$ déterminée, laquelle reste inchangée jusqu'à l'application du champ électrique pulsé.

D'autre part, le champ électrique continu doit avoir une amplitude suffisamment faible pour que seuls les niveaux d soient peuplés appréciablement. Nous avons pu de cette façon, en choisissant les polarisations des rayonnements excitateurs, observer séparément les seuils d'ionisation correspondant à chaque valeur de $|m_L|$. Ceci a été fait en particulier pour l'état $20d$ et les résultats sont présentés sur les figures 20 et 20bis.

Quand aucun champ continu n'est appliqué, tous les seuils d'ionisation sont observés pour chacun des trois types d'excitation optique. Quand le champ continu est appliqué les trois courbes représentant le signal d'ions deviennent différentes et, à chaque seuil observé, on peut attribuer une valeur de $|m_L|$.

Les figures 20 et 20bis présentent l'évolution du signal d'ions pour chaque type d'excitation optique lorsque l'amplitude du champ continu augmente.

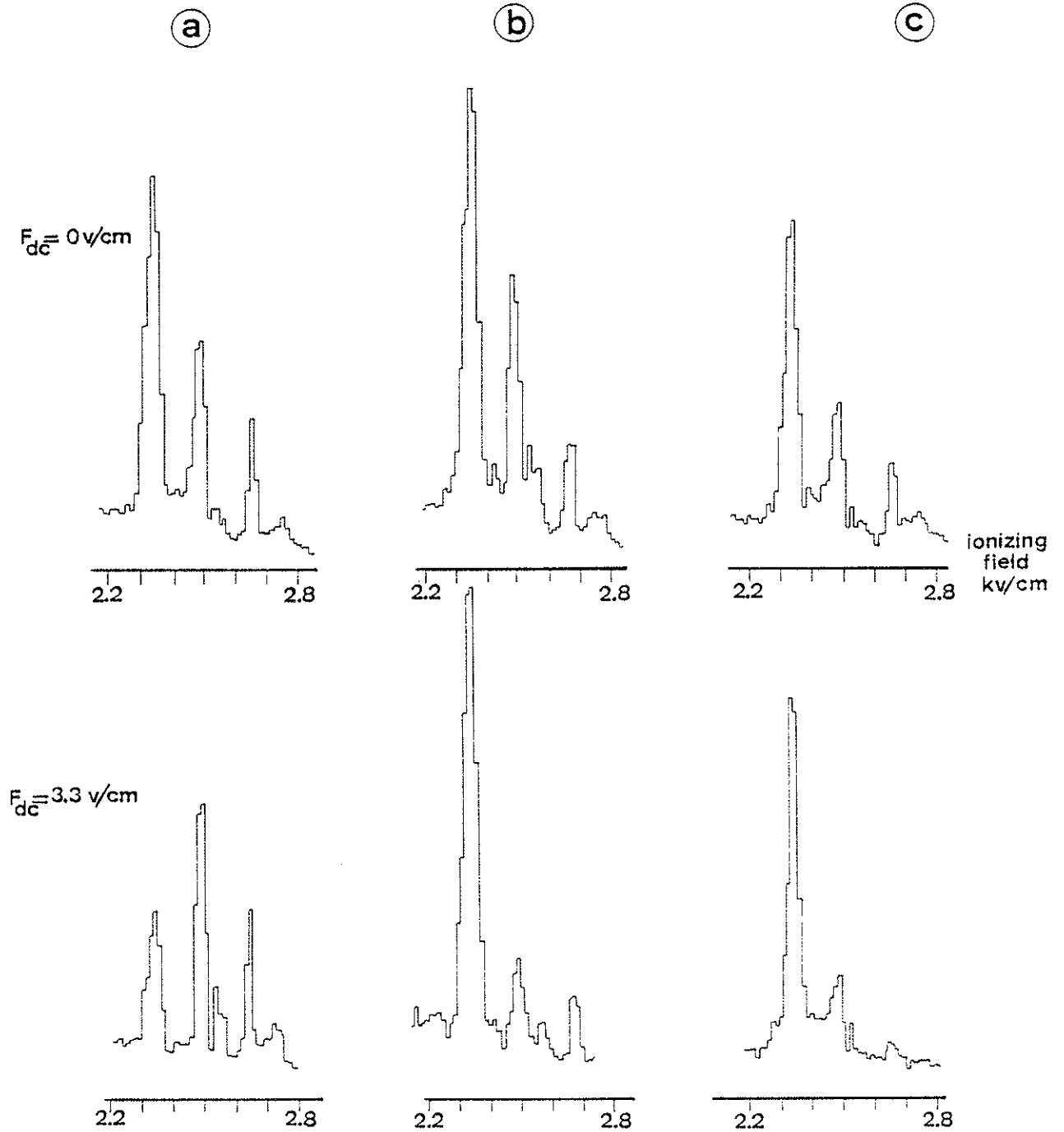
La dépendance en $|m_L|$ des seuils d'ionisation observés pour l'état 20d est donnée dans le Tableau III.

TABLEAU III

Seuils d'ionisation (en kV/cm) et leur dépendance en $|m_L|$ pour l'état 20d du sodium

| | $ m_L = 0$ | $ m_L = 1$ | $ m_L = 2$ |
|--|-------------|-------------|-------------------------------|
| GALLACHER et al. [78] vitesse d'ionisation 10^7 s^{-1} | 2,22 | 2,30 | 2,48 2,62 2,73 |
| Notre expérience vitesse d'ionisation 10^6 s^{-1} | 2,33 | 2,33 | 2,48 2,54 2,66 2,76* |

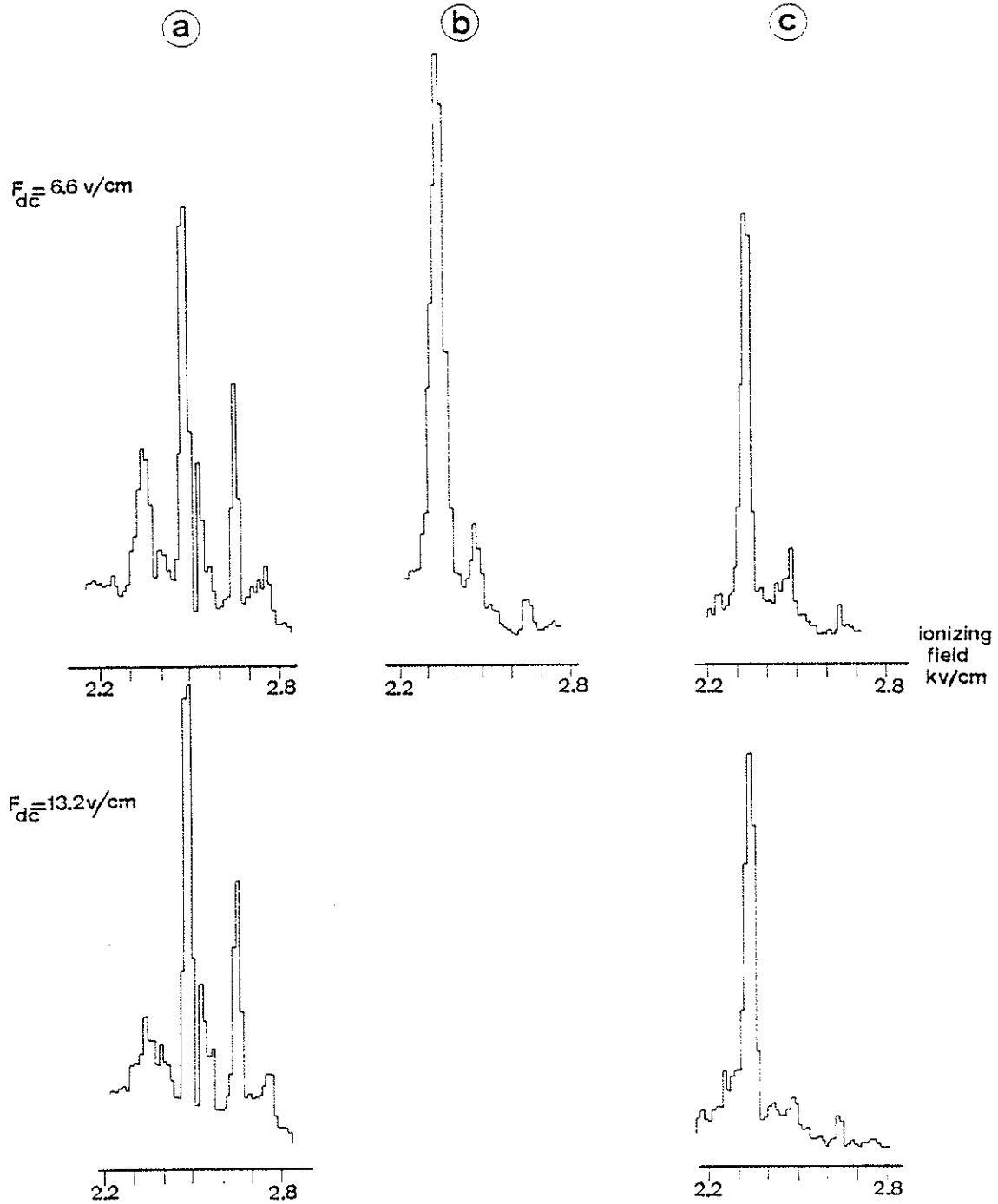
* Le signal obtenu pour ce seuil est très faible.



Figures 20 et 20bis

Signaux d'ions en fonction de l'amplitude du champ électrique pulsé obtenus avec la méthode de la figure 15(B) pour l'état 20d du sodium

Le cas (a) correspond à l'excitation optique de la figure 12-a (Etat final $m_L = 2$)



Le cas (b) correspond à l'excitation optique de la figure 12-b
(Etat final $m_L = 1$)

Le cas (c) correspond à l'excitation optique de la figure 12-c
(Etat final $m_L = 0$)

Les différents enregistrements situés sur une même verticale montrent
l'évolution du signal lorsque l'on fait varier l'amplitude
du champ électrique permanent F_{dc} .

Dans notre expérience les champs critiques mesurés correspondent à une vitesse d'ionisation de 10^6 s^{-1} . Les résultats antérieurs obtenus par GALLAGHER [78] sur le même niveau 20d, et qui figurent également dans le Tableau III, correspondent à une vitesse d'ionisation de 10^7 s^{-1} . Comme on s'attend à ce que la vitesse d'ionisation varie très rapidement avec l'amplitude du champ électrique une comparaison qualitative reste possible entre ces deux résultats. Plus précisément, GALLAGHER et ses collaborateurs [80] ont estimé qu'une augmentation de 3,5% de l'amplitude du champ électrique faisait passer la vitesse d'ionisation de 10^6 s^{-1} à 10^7 s^{-1} ; par conséquent, pour une comparaison plus rigoureuse, nos résultats doivent être majorés de 3,5% avant d'être comparés à ceux de GALLAGHER. En tout état de cause, cette correction reste inférieure aux incertitudes sur les mesures (5% pour chaque mesure). Il apparaît sur le Tableau III que nos résultats et ceux de GALLAGHER sont tous compatibles compte tenu des incertitudes expérimentales. De plus, dans les deux expériences, seul l'état $|m_L| = 2$ présente des seuils multiples. Par contre nous n'avons pas pu dans notre expérience observer une différence mesurable entre les seuils correspondant à $|m_L| = 0$ et $|m_L| = 1$, alors que nous sommes capables avec notre méthode de séparer des seuils d'ionisation qui diffèrent d'au moins 2%. Ce résultat est en contradiction avec les valeurs annoncées par GALLAGHER.

Un calcul récemment fait par COOKE et GALLAGHER [86] permet de rendre compte de la dépendance en $|m_L|$ des seuils d'ionisation par champ. Ce modèle prévoit que les seuils correspondant à $|m_L| = 2$ et $|m_L| = 1$ sont, pour l'état 20d, supérieurs au seuil correspondant à $|m_L| = 0$ de 5,4% et 2,6% respectivement. Cette prédiction est compatible avec les mesures de GALLAGHER pour l'état $|m_L| = 1$; elle est par contre en accord avec nos résultats pour les seuils correspondant à $|m_L| = 2$. En pratique les mesures faites dans les deux cas n'ont pas une précision suffisante pour que des effets aussi faibles puissent être valablement comparés au résultat du calcul.

La même méthode pour étudier la dépendance en $|m_L|$ nous a permis de vérifier que le seuil le plus bas observé pour l'état $26d$ correspond à $|m_L| = 0$. Il en est probablement de même pour les autres états nd . Pour chaque état nd la valeur du champ critique F_c correspondant au seuil le plus bas observé est comparée à la valeur théorique $F_{cth} = \frac{1}{16n^4}$. Tenant compte des résultats de KLEPPNER [75], nous avons négligé le défaut quantique pour les états nd ($n^* = n$). Le résultat de cette comparaison, le rapport $\frac{F_c}{F_{cth}}$, est porté sur la figure 18 en fonction de n^* pour tous les états nd étudiés.

En ce qui concerne les états np , seuls trois états ont été étudiés ($n = 26, 27$ et 30). L'excitation optique a lieu en présence d'un champ électrique continu. La géométrie et les polarisations de la fig. 12c ont toujours été utilisées. Par conséquent, les seuils observés correspondent à $|m_L| = 0$. Les valeurs mesurées pour ces seuils sont regroupées dans le Tableau II et, pour chaque état np , le champ critique correspondant au seuil inférieur observé est comparé avec la valeur théorique $F_{cth} = \frac{1}{16(n^*)^4}$ sur la figure 18. Nous avons utilisé pour les états np , $n^* = n - 0,86$, valeur utilisée par DUCAS [75] et qui est en accord avec la valeur que l'on peut calculer à partir des énergies des niveaux [87].

C - DISCUSSION des RESULTATS ; CONFIRMATION d'un PASSAGE
ADIABATIQUE de CHAMP NUL en CHAMP ELECTRIQUE
FORT pour les ETATS $|m_L| = 0$.

Il apparaît clairement sur la figure 18 que les points correspondant à des états nd sont au-dessus de ceux correspondant aux états ns , tandis que ceux correspondant aux états np sont en-dessous.

Par conséquent $F_{cth} = \frac{1}{16(n^*)^4} = \frac{E_{nl}^2}{4}$ n'est probablement pas la meilleure loi possible pour décrire simultanément les seuils d'ionisation

des états s , p et d $|m_L| = 0$. Tous les points de la figure 18 correspondent (certainement pour les états ns et np , et très probablement pour les états nd) à des seuils d'ionisation d'états $|m_L| = 0$. Pour des atomes dans de tels états $|m_L| = 0$ on s'attend à ce que le passage de champ nul en champ ionisant se fasse de façon adiabatique comme ceci a été montré antérieurement par GALLAGHER [80] même lorsque le temps de montée de l'impulsion de champ électrique est très court (< 100 ns). Du fait du grand nombre de niveaux Stark $|m_L| = 0$ issus de la même multiplicité n , l'application de la règle de non croisement entre niveaux $|m_L| = 0$ a pour conséquence que les prolongements adiabatiques en champ fort des états np , $(n+1)s$ et nd ont des énergies de liaison W_{nl} pratiquement égales (voir figure 21). GALLAGHER et ses collaborateurs ont suggéré et observé qu'il était plus satisfaisant de considérer le champ critique d'ionisation F_c comme une fonction de W_{nl} plutôt que comme une fonction de l'énergie non perturbée E_{nl} . Dans ces conditions les champs critiques correspondant aux états np , $(n+1)s$ et nd $|m_L| = 0$ doivent être pratiquement égaux. On peut voir sur le Tableau IV que c'est effectivement le cas, à la précision de nos mesures.

TABEAU IV

Comparaison entre les seuils d'ionisation
les plus bas pour les états nd , $(n+1)s$ et np du sodium.

Les champs critiques sont donnés en kV/cm.

| n | 22 | 24 | 25 | 26 | 27 | 29 | 30 |
|---------------------|------|------|-------|-------|-------|-------|-------|
| nd $ m_L = 0$ | 1,58 | 1,09 | 0,926 | 0,811 | | 0,520 | 0,458 |
| $(n+1)s$ | 1,60 | 1,10 | 0,953 | 0,813 | 0,714 | 0,523 | 0,457 |
| np $ m_L = 0$ | | | | 0,808 | 0,712 | | 0,465 |

D'après un calcul de COOKE ET GALLAGHER [86] les champs critiques correspondant à deux niveaux Stark $|m_L| = 0$ adjacents doivent être différents de moins de 1% pour les valeurs de n que nous avons étudiées ($n > 20$) donc nettement moins que l'incertitude expérimentale.

Les valeurs expérimentales données dans le Tableau IV confirment donc le passage adiabatique des atomes de champ nul en champ électrique ionisant.

Nous n'avons pas d'explication définitive pour les seuils multiples que nous avons observés ; plusieurs hypothèses peuvent être faites et des expériences ultérieures devraient permettre de choisir entre elles. Ce problème sera évoqué dans le chapitre suivant.

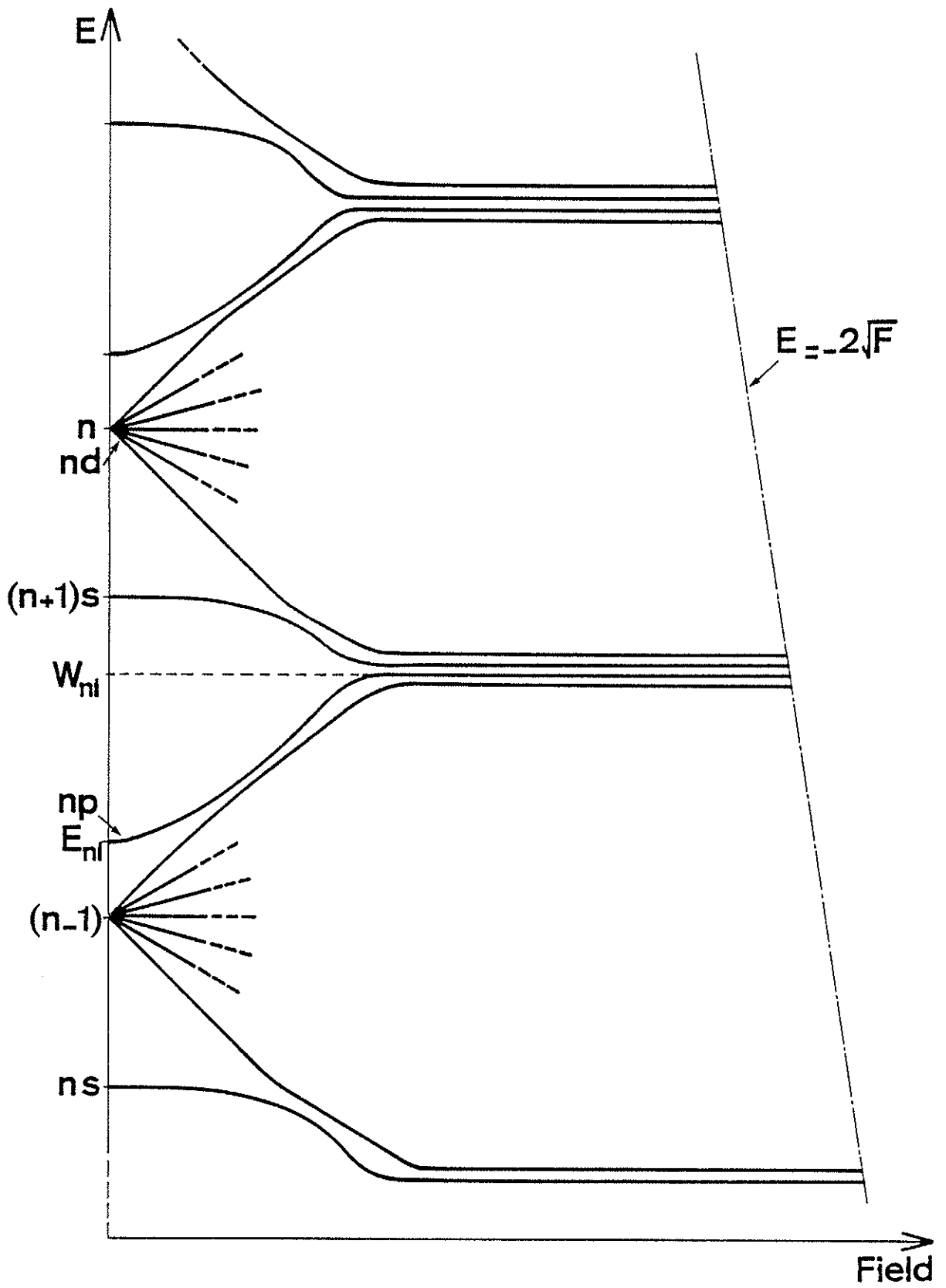
Figure 21

Tracé schématique des niveaux d'énergie de l'atome de sodium dans un champ électrique pour les états $|m_L| = 0$. La figure montre comment sont définies les énergies non perturbées ($E_{n\ell}$) et en champ électrique fort ($W_{n\ell}$) pour un état $n\ell$.

Pour chaque valeur de n , le niveau nd , à cause de son faible défaut quantique est pratiquement dégénéré avec tous les autres niveaux $n\ell$, $\ell > 2$ en champ nul. La position commune sur la figure de ces niveaux dégénérés est indiquée par la lettre n . Lorsque le champ électrique est appliqué, la dégénérescence est levée et l'on obtient une structure Stark linéaire. Puisque, en champ nul, le niveau nd est un petit peu en-dessous des autres niveaux $n\ell$, $\ell > 2$, son prolongement adiabatique est le niveau le plus bas de la structure Stark linéaire. La loi classique qui donne le champ critique en fonction de l'énergie du niveau

$F_c = \frac{E_0^2}{4}$ (Loi du "saddle point" classique) est également indiquée

sur la figure.



V - CONCLUSIONS.

Nous venons de voir que la loi classique du "saddle point", qui prévoit qu'un niveau s'ionise dans un champ \vec{F} dès que $F \gg \frac{E^2}{4}$, est en assez bon accord dans le cas du sodium ou en excellent accord dans le cas du rubidium avec les résultats expérimentaux.

Nous allons montrer maintenant qu'elle ne repose sur aucun calcul rigoureux et que la réalité physique du phénomène est plus complexe. Nous pouvons faire tout d'abord deux remarques :

- D'une part s'il est exact de dire, dans le cadre d'un modèle à une dimension que, si le potentiel est de la forme $V(z) = -\frac{1}{z} + Fz$ il n'y a pas d'états liés ayant une énergie supérieure à l'énergie du "col" ("saddle point"), c'est-à-dire pour $E > E_c = -2\sqrt{F}$ (voir paragraphe II), ceci est, par contre, faux dans le cas réel d'un modèle à 3 dimensions où le potentiel est $V(r) = -\frac{1}{r} + Fz$. Ceci se comprend, classiquement, assez facilement, il suffit que l'orbite fermée représentant l'état lié ne passe pas dans le voisinage du col de la fonction potentielle.

- D'autre part, le potentiel coulombien en $\frac{1}{r}$ pour décrire l'interaction de l'électron de valence avec le reste de l'atome n'est rigoureusement valable que dans le cas de l'atome d'hydrogène ; pour les autres atomes il faut tenir compte du fait que l'électron de valence pénètre dans le nuage électronique des électrons du coeur, ce qui modifie le potentiel vu par cet électron.

On voit donc que l'hydrogène va jouer, parmi les atomes, un rôle à part puisque pour lui, et pour lui seul, la première des deux remarques est seule à s'appliquer.

A - CAS de l'HYDROGENE.

La fonction potentielle est rigoureusement $V(r) = -\frac{1}{r} + Fz$ et l'équation de Schrödinger qui en découle $(\frac{1}{2} \Delta + E + \frac{1}{r} - Fz)\psi = 0$ est séparable si on utilise les coordonnées paraboliques ($\xi = r+z$, $\eta = r-z$ et $\varphi = \arctg \frac{y}{x}$). Le problème se ramène donc à la résolution de deux équations différentielles à une dimension.

Toutes les étapes du calcul utilisant la méthode W. K. B. [88] [90] sont décrites dans l'ouvrage de BETHE et SALPETER [89].

Le résultat le plus important est que l'on obtient des états liés (ou plutôt quasi-liés à cause de l'effet tunnel) très loin au-dessus de la limite du "saddle-point classique" (voir figure 22).

En effet, suivant la coordonnée ξ le potentiel effectif est tel que l'on trouve toujours des fonctions d'onde localisées quel que soit F , par contre, suivant la coordonnée η , le potentiel effectif qui intervient dans l'équation différentielle présente un maximum secondaire séparant deux régions de creux de potentiel dont l'une s'étend à l'infini. On a donc une structure de "col" avec une barrière de potentiel comme dans la figure 1 et cette barrière diminue lorsque F augmente. Mais la valeur en énergie de ce "saddle point" (col) ne dépend plus seulement de F mais également de $|m_L|$ et de la constante de séparation Z_2 .

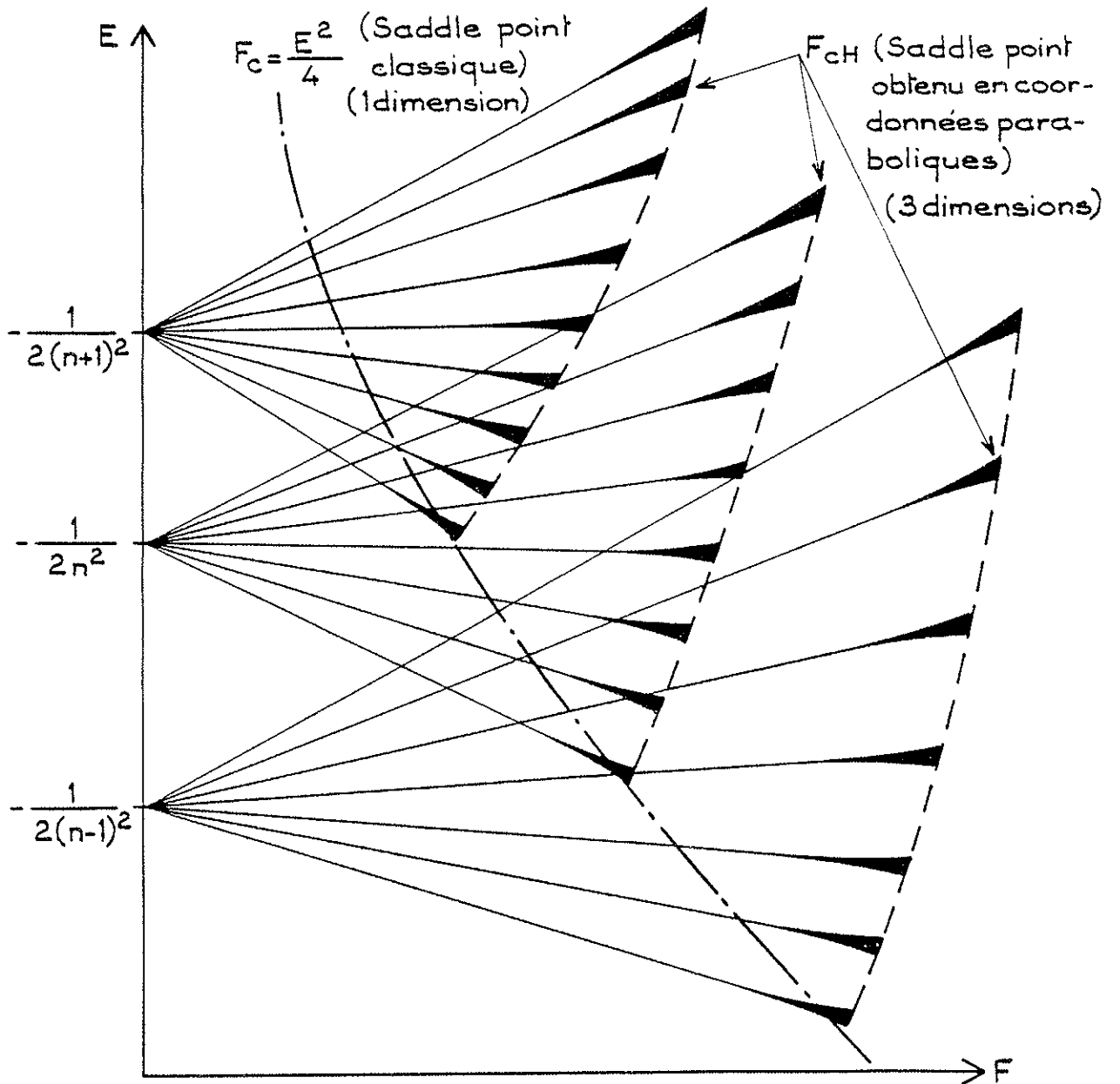


Figure 22

Structure Stark de l'atome d'hydrogène.
Le rôle de l'effet tunnel est indiqué par le fait
que chaque niveau s'élargit pour $F < F_{CH}$.

Pour les états $|m_L| = 1$ par exemple, le champ critique est maintenant donné par

$$F_{CH} = E^2 / 4Z_2 .$$

Comme Z_2 peut prendre des valeurs pouvant aller de 1 environ pour certains niveaux à $\frac{1}{n}$ environ pour d'autres, on comprend que, dans le cas des états de Rydberg (n grand), F_{CH} puisse être beaucoup plus grand que $F_c = \frac{E^2}{4}$, la valeur donnée par la loi du saddle point classique. C'est cette dépendance en Z_2 qui explique que, pour une même valeur de n , ce sont les états qui ont l'énergie de liaison la plus faible qui s'ionisent le plus difficilement (voir figure 22).

Cet effet, s'il n'a pas été vérifié expérimentalement sur les états de Rydberg de l'hydrogène (n élevé), a été vérifié sur les niveaux plus profonds par RAUSCH et TRAUBENBERG [91]. Il faut bien entendu tenir compte également de l'effet tunnel à travers la barrière de potentiel, ce qui entraîne une diminution du champ critique pour lequel l'atome s'ionise par rapport à la valeur F_{CH} obtenue classiquement, mais cela ne fait que décaler vers les faibles valeurs de F toutes les valeurs des champs critiques F_{CH} sans modifier notablement l'allure de la fig. 22 sur laquelle on voit clairement que la loi du "saddle point classique" ne convient pas du tout.

B - CAS des ATOMES ALCALINS.

Pour les atomes alcalins on observe expérimentalement que les différents niveaux s'ionisent dans un champ électrique F dès que $F > \frac{E^2}{4}$ (loi du "saddle point classique"). Il y a donc apparemment une très grande différence entre l'hydrogène et les autres atomes. Par contre,

en-dessous de la limite du "saddle-point classique" $F < \frac{E^2}{4}$ la structure des niveaux Stark observée, par exemple sur le sodium [81], ressemble à la structure des niveaux Stark de l'hydrogène mis à part le fait que tous les croisements de niveaux doivent être remplacés par des anticroisements. Les niveaux venant de multiplicités n différentes n'étant plus indépendants. On peut alors se demander ce qui se passe, pour les atomes alcalins autres que l'hydrogène, au-delà de la limite du "saddle point classique". Intuitivement on pourrait croire que l'on va trouver un continuum plus ou moins plat. Une expérience faite par LIBERMAN et PINARD a totalement infirmé cette hypothèse [92]. Ils ont en effet observé des niveaux discrets au-dessus de la limite du "saddle point classique". Ces niveaux ont une largeur en fréquence inférieure à 50 MHz, ce qui donne une limite inférieure pour leur durée de vie, mais on sait également qu'ils s'ionisent spontanément en un temps inférieur à la microseconde puisqu'ils sont au-delà de la limite du "saddle point" classique. La situation a été définitivement clarifiée par une expérience effectuée récemment sur le lithium par KLEPPNER et ses collaborateurs [93] qui ont étudié ces niveaux au-dessus de la limite $F_c = \frac{E^2}{4}$ pour un grand domaine de champ électrique et d'énergie. Ils ont montré que ces niveaux existaient dans un vaste domaine au-delà de la limite du "saddle point classique" et qu'ils formaient une structure de niveaux analogue à la structure des niveaux Stark de l'hydrogène. Ils disparaissent en s'élargissant et en se fondant dans le continuum pour les mêmes valeurs de champ électrique F_{CH} que les niveaux correspondants de l'atome d'hydrogène. Ils sont le prolongement au-delà de la limite du "saddle point classique" des niveaux Stark stables observés précédemment (figure 23).

La seule différence entre l'atome d'hydrogène et les atomes alcalins est donc maintenant la stabilité des niveaux Stark qui est grande pour l'hydrogène jusqu'au voisinage de F_{CH} alors que pour les autres atomes l'ionisation de ces niveaux apparaît de façon notable dès que

$$F > F_c = \frac{E^2}{4} .$$

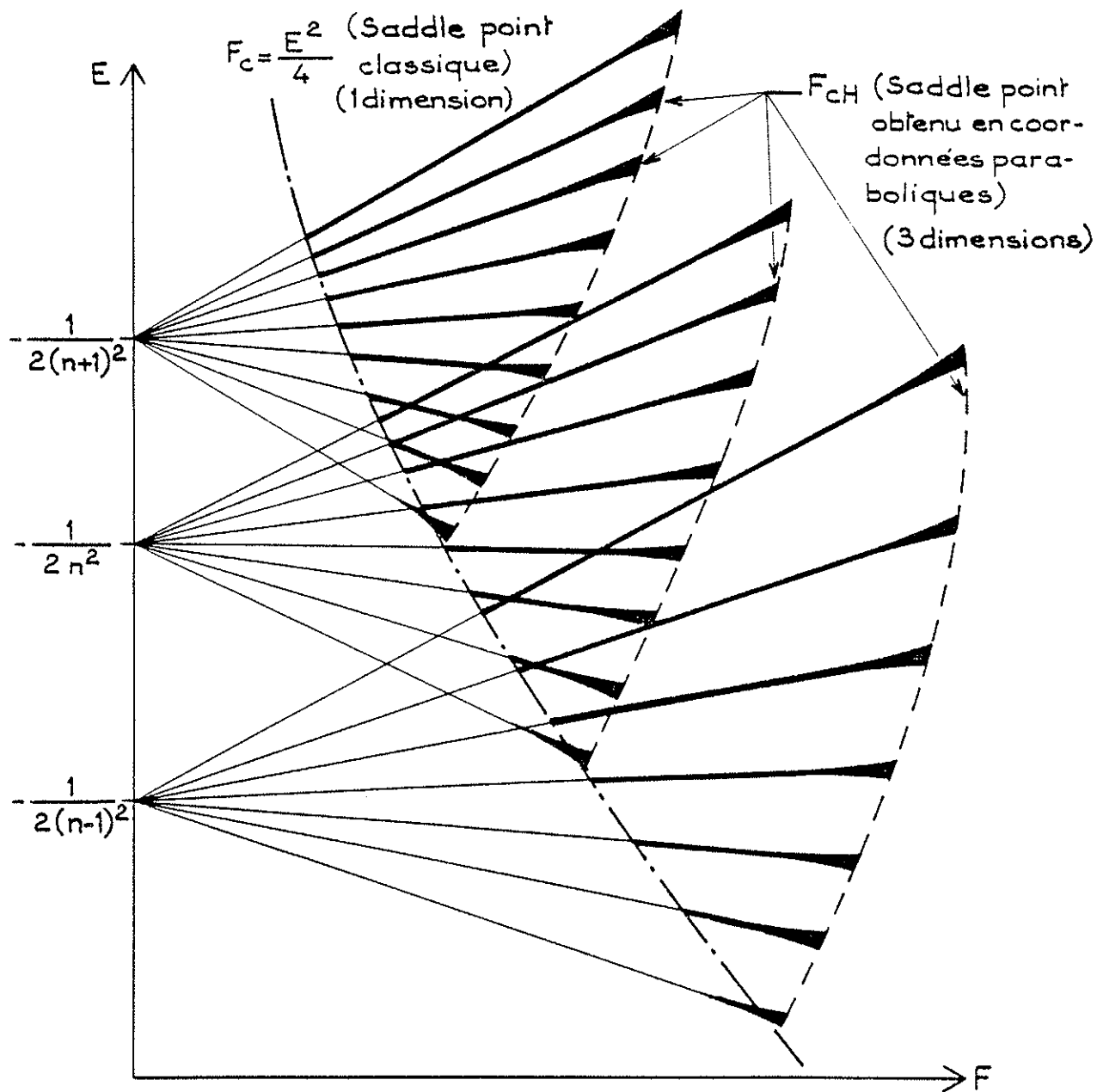


Figure 23

Structure Stark de l'atome alcalin.

Le rôle de l'effet tunnel est indiqué par le fait que chaque niveau s'élargit pour $F < F_{CH}$.

En traits fins — les structures Stark stables.
 En traits gros — les structures Stark instables.

Cette différence de stabilité peut s'expliquer par la deuxième remarque qui a été énoncée au début de ce paragraphe. Pour un atome alcalin, contrairement à l'hydrogène, l'interaction de l'électron de valence avec le reste de l'atome ne se décrit pas par un potentiel coulombien $V(r) = -\frac{1}{r}$, par suite il n'y a plus séparation des variables en coordonnées paraboliques et les niveaux correspondant à des valeurs de n différentes ne sont plus indépendants. Un niveau Stark provenant d'une multiplicité n_0 donnée se couplera donc avec des niveaux Stark "descendants" provenant de valeurs de n supérieures à n_0 qui, eux, s'ionisent. On a donc affaire à un phénomène d'ionisation par couplage avec des niveaux instables venant de valeurs de n supérieures.

C - CONSEQUENCES.

Un certain nombre de conséquences peuvent être déduites de cette explication du processus d'ionisation.

- Cette ionisation par couplage sera d'autant plus forte que les niveaux seront fortement couplés, donc fortement non hydrogénoïdes. On s'attend pour cette raison à ce que les structures Stark "instables" au-delà de la limite du saddle point classique soient plus facilement observables pour les alcalins légers que pour les alcalins lourds et pour les états $|m_L|$ élevés que pour les états $|m_L| = 0$. Il est même possible que les structures Stark "instables" disparaissent lorsque les couplages sont trop forts.

- Si l'ionisation des atomes se produit par couplage avec des niveaux instables venant de n supérieurs, la vitesse d'ionisation n'a pas de

raison de varier de façon monotone croissante avec le champ F . On peut avoir, en fonction de F , des maximums successifs dans la courbe de vitesse d'ionisation pour un niveau donné. Un tel phénomène permettrait de rendre compte des seuils multiples observés par GALLAGHER et par nous-mêmes pour des états non dégénérés (comme cela a été signalé au paragraphe IV. Cette explication de l'origine des seuils multiples observés expérimentalement peut concurrencer l'explication proposée par GALLAGHER (le passage partiellement adiabatique). Une expérience dans laquelle on pourrait suivre l'évolution de chaque état d'une multiplicité n donnée en fonction du champ électrique continu F_{dc} appliqué pendant l'excitation optique devrait permettre de choisir entre ces deux hypothèses. Pour le moment le fait que nous ayons vu également des seuils multiples pour des états n_s nous fait préférer la première explication à celle du passage partiellement adiabatique.

- La loi du "saddle point classique" $F_c = \frac{E^2}{4}$ nous apparaît maintenant comme une loi limite. La courbe $F_c = \frac{E^2}{4}$ sépare en effet le plan (E, F) en deux régions, tous les niveaux de l'hydrogène ionisés par effet tunnel provenant de toutes les multiplicités n se trouvent d'un même côté de cette courbe. De l'autre côté de cette courbe tous les niveaux Stark sont stables. La courbe $F_c = \frac{E^2}{4}$ apparaît donc comme une courbe enveloppe englobant tous les niveaux instables. En effet, si l'on reprend le graphique de la figure 1, il est faux de dire qu'il n'y a pas de niveaux stables pour $E > E_c$. Par contre on peut affirmer que pour une énergie $E < E_c$ les états correspondants à des électrons localisés au voisinage de $r=0$ ($r=0$ position du noyau) sont des états quasi-stables qui ne peuvent se coupler avec le continuum que par effet tunnel à travers la barrière, effet rapidement négligeable dès que $E_c - E$ augmente.

D - PERSPECTIVES.

Le phénomène de l'ionisation par un champ électrique statique est maintenant bien compris dans ses détails.

Le problème des seuils multiples observés pour certains états non dégénérés reste pour le moment non résolu ; une expérience qui permettrait de suivre les atomes dans les différents niveaux d'une multiplicité n , au fur et à mesure que le champ continu F_{dc} augmente, devrait permettre de choisir entre les différentes explications possibles.

Enfin, il est également possible d'utiliser la méthode, que nous avons utilisée pour observer les seuils d'ionisation correspondant à des valeurs de $|m_L|$ différentes pour le niveau $20d$, comme moyen de détection très sensible dans des expériences analogues aux battements quantiques optiques [94] pour mesurer des structures fines, par exemple les structures fines des niveaux nd du sodium.

CONCLUSION GENERALE

A la fin de chacune des trois parties de cet exposé, nous avons indiqué les prolongements immédiats et à court terme qui peuvent être envisagés. Nous allons maintenant, en conclusion à ce mémoire, tenter d'ouvrir quelques perspectives à plus long terme.

L'étude sur l'ionisation par champ des états de Rydberg du sodium, qui a été décrite dans la troisième partie de l'exposé, doit être remplacée dans le cadre plus vaste des études faites sur les états de Rydberg au Laboratoire Aimé Cotton. Nous avons déjà mentionné les travaux de DUONG, LIBERMAN et PINARD [17] et de LIBERMAN et PINARD [92] sur le rubidium à très haute résolution. Ces expériences ont été poursuivies depuis au laboratoire [95][96] et la structure des niveaux en champ sub-critique et sur-critique a été étudiée en détail. Des recherches analogues ont été menées dans d'autres laboratoires [97][98] et l'on peut dire qu'à l'heure actuelle la phénomène physique est, dans son ensemble, bien compris.

En ce qui concerne la photoionisation à partir d'états atomiques excités, nous nous sommes heurtés à de grosses difficultés expérimentales essentiellement dues au fait qu'il faut balayer une très grande plage de fréquence pour observer des variations notables des sections efficaces de photoionisation. Il faut également signaler que l'expérience qui nous a permis d'observer les niveaux n_f du sodium a clairement prouvé l'efficacité de la méthode de détection des résonances optiques par photoionisation à partir de l'état excité.

La méthode de détection des résonances optiques par pompage optique et déflexion magnétique, qui a été décrite dans la première partie de l'exposé, s'est révélée très efficace. De nombreux résultats ont déjà été obtenus sur les isotopes d'atomes alcalins (Rb, Cs, Fr) [57][58][8]; des expériences sont en cours sur les isotopes de sodium (raie D_2) et de potassium.

Dans un proche avenir, on peut envisager une nouvelle série d'expériences sur les isotopes de francium avec deux motivations :

- D'abord localiser la raie D_1 et déterminer ainsi la structure fine $^2P_{1/2} - ^2P_{3/2}$ (actuellement seule la raie D_2 est connue).
- Ensuite étendre les mesures de structures hyperfines et de déplacements isotopiques aux isotopes "lourds" de l'élément francium ($M \gg 220$). En effet, pour cet élément, les isotopes dont la durée de vie est assez longue pour que les mesures puissent être faites se répartissent en deux groupes : une série d'isotopes "légers" ($208 < M < 215$) et une série d'isotopes "lourds" ($M > 220$). Les isotopes situés entre ces deux zones ont des durées de vie très courtes. Toutes les mesures faites jusqu'ici portent sur les isotopes "légers". Il serait intéressant, en particulier pour le déplacement isotopique, de faire les mesures correspondantes sur les isotopes "lourds".

Comme il a été dit dans l'exposé, la méthode de déflexion magnétique n'est pas généralisable et s'applique essentiellement aux alcalins. D'autres séries d'isotopes radioactifs ont déjà été étudiées par d'autres méthodes, notamment les isotopes de Hg par E. W. OTTEN et ses collaborateurs [99].

Pour des raisons liées à la possibilité d'une interprétation nucléaire plus aisée et plus fiable, il serait intéressant d'étudier les mêmes propriétés (structures hyperfines et déplacements isotopiques) sur des atomes à nombre pair de protons, essentiellement alcalino-terreux et gaz rares. Le groupe de E. W. OTTEN entreprend actuellement

des expériences de ce type à ISOLDE (C.E.R.N.) sur les isotopes de baryum par la technique de spectroscopie colinéaire sur jet rapide [100][101]. Nous envisageons pour notre part d'étudier les isotopes radioactifs de gaz rares en spectroscopie optique à haute résolution. Pour que les transitions étudiées soient dans le domaine optique, il faut bien sûr partir d'un état métastable. La méthode de déflexion magnétique utilisée pour les alcalins n'est plus adaptée et il faut choisir une autre méthode de détection des résonances optiques. On peut penser à la photoionisation ou à l'ionisation par un champ électrique statique si le niveau supérieur de la transition optique étudiée est un niveau très excité. On peut aussi envisager d'utiliser la technique de spectroscopie colinéaire sur jet rapide [102] ou une méthode de "Rabi optique" sur jet rapide [43][103].

BIBLIOGRAPHIE

- [1] F. BITTER, S. P. DAVIS, B. RICHTER et J. E. R. YOUNG, Phys. Rev. 96, 1531 (1954).
- [2] V. S. LETOKHOV dans "High-Resolution Spectroscopy" édité par K. Shimoda, Topics en Applied Physics, Vol. 13, page 95 Springer-Verlag - Berlin (1976).
- [3] P. CAHUZAC, Thèse, Université Paris-Sud, Centre d'Orsay (1974).
- [4] C. WIEMAN et T. W. HÄNSCH, Phys. Rev. Lett. 36, 1170 (1976).
- [5] B. CAGNAC, G. GRYNBERG et F. BIRABEN, Phys. Rev. Lett. 32, 643 (1974).
- G. GRYNBERG et B. CAGNAC, Rep. on Progress in Physics 40, 791 (1977).
- [6] V. P. CHEBOTAYEV dans "High Resolution Laser Spectroscopy" édité par K. Shimoda, Topics in Applied Physics, Vol. 13, page 201 Springer-Verlag - Berlin (1976).
- [7] J. C. KELLER, Thèse, Université Paris-Sud, Centre d'Orsay (1978).
- [8] S. LIBERMAN, J. PINARD, H. T. DUCNG, P. JUNCAR, J.-L. VIAME, P. JACQUINCT, G. HUBER, F. TOUCHARD, S. BÜTTGENEACH, C. THIBAUT, R. KLAPISCH, A. PESNELLE, C. R. Acad. Sci. 286B, 253 (1978).
- [9] P. JACQUINOT dans "High Resolution Laser Spectroscopy" édité par K. Shimoda, Topics in Applied Physics, Vol. 13, page 51 Springer-Verlag - Berlin (1976).
- [10] W. HARTIG et H. WALTHER, Appl. Phys. 1, 171 (1973).
- [11] W. LANGE, J. LUTHER, B. NOTTBECK et H. W. SCHRÖDER, Opt. Commun. 8, 157 (1973).

- [12] S. L. KAUFMAN, G. W. GREENLEES, D. A. LEWIS, J. F. TONN,
J. H. BROADHURST et D. L. CLARK dans "Proceedings of the
Fourth International Conference on Hyperfine Interactions
(Madison-New Jersey, Juin 1977) édité par R. S. Raghavan
et D. E. Murnick, North Holland Publishing Company,
Amsterdam (1978).
- [13] R. FRISCH, Z. Physik 86, 42 (1933).
- [14] P. JACQUINOT, S. LIBERMAN, J.-L. PICQUÉ et J. PINARD, Opt. Commun.
8, 167 (1973).
- [15] A. ASHKIN, Phys. Rev. Letters 25, 1321 (1970).
- [16] J. L. PICQUÉ, Thèse, Université Paris-Sud, Centre d'Orsay (1977).
- [17] H. T. DUONG, S. LIBERMAN et J. PINARD, Opt. Commun. 18, 533 (1976).
- [18] K. HEILIG et A. STEUDEL, At. Nucl. Data Tables 14, 613 (1974).
- [19] J. BAUCHE et R.-J. CHAMFEAU dans "Advances in Atomic and Molecular
Physics, Vol. 12, Academic Press, New York (1976).
- [20] N. F. RAMSEY, Molecular Beams, Clarendon Press, Oxford (1956),
page 72 et suivantes.
- [21] V. W. COHEN, Phys. Rev. 46, 713 (1934).
S. MILLMAN, Phys. Rev. 47, 739 (1935).
- [22] C. THIBAUT, Thèse, Université Paris-Sud, Centre d'Orsay (1971).
- [23] C. THIBAUT, M. EPHERRE, G. AUDI, R. KLAPISCH, G. HUBER, F. TOUCHARD,
D. GUILLEMAUD, F. NAULIN, à paraître dans Proceedings of
the Six International Conference on Atomic Masses - East
Lansing (Sept. 1979).
- [24] E. MAJORANA, Nuovo Cimento 9, 43 (1932).
- [25] N. F. RAMSEY, Molecular Beams, Clarendon Press, Oxford (1956),
page 379 et suivantes.
W. WEIERSHAUSEN, Ann. Phys. (Leipzig) 15, 252 (1965) ; dans Advances
in Mass Spectrometry, Vol. 3, p. 755, édité par W. L. Mead
The Institute of Petroleum, London (1966).
- [26] P. JUNCAR et J. PINARD, Opt. Commun. 14, 438 (1975).
- [27] P. JUNCAR, Thèse, Université Paris-Sud, Centre d'Orsay (1976).
- [28] W. G. SCHWEITZER Jr., E. G. KESSLER Jr., R. D. DESLATTES, H. P. LAYER
et J. R. WHETSTONE, Applied Optics 12, 2927 (1973).

- [29] O. STERN, Z. Phys. 7, 249 (1921).
- [30] W. GERLACH et O. STERN, Ann. Physik 74, 673 (1924) et 76, 163 (1925).
- [31] I. I. RABI, J. M. B. KELLOGG et J. R. ZACHARIAS, Phys. Rev. 46,
163 (1934).
- [32] S. MILLMAN, I. I. RABI, J. R. ZACHARIAS, Phys. Rev. 53, 384 (1938).
- [33] H. FRIEDBURG et W. PAUL, Naturwiss. 38, 159 (1951) et Z. Physik
130, 493 (1951).
- [34] G. BENNEWITZ et W. PAUL, Z. Physik 139, 489 (1954).
- [35] A. LEMONICK, F. M. PIPKIN et D. R. HAMILTON, Rev. Sci. Inst. 26,
1112 (1955).
- [36] C. EKSTRÖM, M. OLSMATS et B. WANNBERG, Nuclear Inst. and Meth. 103,
13 (1972).
M. OLSMATS, B. WANNBERG et I. LINDGREN, Nuclear Instr. and Methods
103, 27 (1972).
- [37] A. M. BERNSTEIN, R. A. HABERSTROH, D. R. HAMILTON, M. POSNER et
J. L. SNIDER, Phys. Rev. B 136, 27 (1964).
- [38] J. M. B. KELLOGG et S. MILLMAN, Rev. Mod. Phys. 18, 323 (1946).
- [39] N. F. RAMSEY, Molecular Beams, Clarendon Press, Oxford (1956)
page 397 et suivantes
- [40] R. A. HABERSTROH, W. J. KOSSLER, O. AMES et D. R. HAMILTON, Phys.
Rev. B 136, 932 (1964).
O. AMES, E. A. PHILLIPS et S. S. GLICKSTEIN, Phys. Rev. B 137,
1157 (1965).
- [41] I. I. RABI, J. R. ZACHARIAS, S. MILLMAN et P. KUSCH, Phys. Rev.
53, 318 (1938).
I. I. RABI, S. MILLMAN, P. KUSCH et J. R. ZACHARIAS, Phys. Rev.
55, 526 (1939).
J. M. B. KELLOGG et S. MILLMAN, Rev. Mod. Phys. 18, 323 (1946).
- [42] J. R. ZACHARIAS, Phys. Rev. 61, 270 (1942).
- [43] A. KASTLER, J. Phys. Radium 11, 255 (1950).
J. BROSEL, A. KASTLER, J. WINTER, J. Phys. Radium 13, 668 (1952).
- [44] R. SCHIEDER et H. WALTHER, Z. Physik 270, 55 (1974).
- [45] W. ERTMER et B. HOFER, Z. Physik A 276, 9 (1976).
- [46] H. BUCKA, Z. Physik 191, 199 (1966).

- [47] D. ZIMMERMANN, Z. Physik 224, 403 (1969).
- [48] V. W. HUGHES, R. L. LONG, M. S. LUBELL, M. POSNER et W. RAITH,
Phys. Rev. A 5, 195 (1972).
- [49] J.-L. PICQUÉ, Thèse, Université Paris-Sud, Centre d'Orsay (1977),
page 142 et suivantes.
- [50] A. LEMONICK et F. PIPKIN, Phys. Rev. 95, 1356 (1954).
- [51] A. M. POSKANZER, G. W. BUTLER et E. K. HYDE, Phys. Rev. C 3, 882
(1971).
- [52] J. BRCSSEL dans Optique et Electronique Quantique, Ecole d'Eté des
Houches (1964), page 189 et suivantes, édité par C.
Witt, A. Blandin et C. Cohen-Tannoudji, Gordon and Breach,
New York, London, Paris (1964).
- [53] C. COHEN-TANNOUJJI et A. KASTLER dans Progress in Optics, édité par
E. Wolf (North-Holland, Amsterdam, 1966), Vol. V.
- [54] P. CEREZ, Thèse, Université Paris-VI (1972).
- [55] G. BRUHAT, Cours de Physique Générale - Optique, page 952, édité
par Masson et Cie, Paris (1965).
- [56] G. L. EPSTEIN et S. P. DAVIS, Phys. Rev. A 4, 464 (1971).
R. NEUMANN, F. TRAGER, J. KOWALSKI et G. zu PUTLITZ, Z. Phys. A
279, 249 (1976).
- [57] G. HUBER, F. TOUCHARD, S. BÜTTGENBACH, C. THIBAUT, R. KLAPISCH,
S. LIBERMAN, J. PINARD, H. T. DUONG, P. JUNCAR,
J.-L. VIALIE, P. JACQUINOT et A. PESNELLE, Phys. Rev.
Lett. 41, 459 (1978).
- [58] S. LIBERMAN, J. PINARD, H. T. DUONG, P. JUNCAR, J.-L. VIALIE,
P. PILLET, P. JACQUINOT ; G. HUBER, F. TOUCHARD,
S. BÜTTGENBACH, C. THIBAUT, R. KLAPISCH et A. PESNELLE
dans Laser Spectroscopy IV, édité par H. Walther et
K. W. Rothe, Springer Series in Optical Sciences, Vol. 21
(Springer-Verlag - Berlin, 1979).
- [59] S. A. TUCCIO, J. W. DUBRIN, O. G. PETERSON et B. B. SNAVELY,
VIII Int. Quantum Electronics Conf., San Francisco (Post
deadline paper) (1974).
- [60] G. V. MARR et D. M. CREEK, Proc. R. Soc. A 304, 233 (1968).

- [61] J. N. BARDSLEY dans Case Studies in Atomic Physics, Vol. 4, page 299 et suivantes, édité par E. W. McDaniel et M. R. C. McDowell, North Holland Publishing Co, Amsterdam (1973).
- [62] D. E. ROTHE, J. Quant. Spectrosc. Radiat. Transfer 9, 49 (1969).
D. E. ROTHE, J. Quant. Spectrosc. Radiat. Transfer 11, 355 (1971).
- [63] K. J. NYGAARD, Phys. Rev. A 12, 1440 (1975).
- [64] R. V. AMBARTZUMIAN, N. P. FURZIKOV, V. S. LETOKHOV et A. A. PURETSKY, Appl. Phys. 9, 335 (1976).
- [65] M. AYMAR, E. LUC-KOENIG et F. COMBET-FARNOUX, J. Phys. B : Atom. Molec. Phys. 9, 1279 (1976).
- [66] I. I. SOBEL'MAN, An Introduction to the Theory of Atomic Spectra, Pergamon, Oxford (1972) pages 321 et 359.
- [67] H. WALTHER dans Frontiers in Laser Spectroscopy, Vol. 1, page 127. Les Houches, session 27, édité par R. Balian, S. Haroche et S. Liberman, North Holland, Amsterdam (1975).
- [68] R. E. GROVE, F. Y. WU et S. EZEKIEL, Phys. Rev. A 15, 227 (1977).
- [69] N. F. RAMSEY, Molecular Beams, Clarendon Press, Oxford (1956) page 412 et page 365.
- [70] P. KUSCH, Lecture Notes on Molecular Beams, Physics Department, Columbia University (1950).
- [71] B. D. ZAK, Thèse, Université de Californie, Berkeley (1971).
- [72] M. J. COLLES et C. R. PIDGEON dans Reports on Progress in Physics 38, 329 (1975).
- [73] J. A. GIORDMAINE, Phys. Rev. Lett. 8, 19 (1962) ;
P. D. MAKER, R. E. TERHUNE, N. NISENOFF et C. M. SAVAGE, Phys. Rev. Lett. 8, 21 (1962).
- [74] J. M. BECKERS, Appl. Opt. 6, 1279 (1967).
- [75] T. W. DUCAS, M. G. LITTMAN, R. R. FREEMAN et D. KLEPPNER, Phys. Rev. Lett. 35, 366 (1975).
- [76] R. F. STEBBINGS, C. J. LATTIMER, W. P. WEST, F. B. DUNNING et T. B. COOK, Phys. Rev. A 12, 1453 (1975).
- [77] M. G. LITTMAN, M. L. ZIMMERMAN et D. KLEPPNER, Phys. Rev. Lett. 37, 486 (1976).

- [78] T. F. GALLAGHER, L. M. HUMPHREY, R. M. HILL et S. A. EDELSTEIN,
Phys. Rev. Lett. 37, 1465 (1976).
- [79] P. CAMUS, R.-J. CHAMPEAU, S. FENEUILLE, S. LIBERMAN, C. MORILLON
et J. PINARD, Colloque International du C.N.R.S., n° 273,
Etats Atomiques et Moléculaires couplés à un continuum.
Atomes et Molécules hautement excités (1977), page 67 et
suivantes. Editions du C.N.R.S. - Paris.
- [80] T. F. GALLAGHER, L. M. HUMPHREY, R. M. HILL et S. A. EDELSTEIN,
Phys. Rev. A 16, 1098 (1977).
- [81] M. G. LITTMAN, M. L. ZIMMERMAN, T. W. DUCAS, R. R. FREEMAN et
D. KLEPPNER, Phys. Rev. Lett. 36, 788 (1976).
- [82] P. JACQUINOT, S. LIBERMAN et J. PINARD, Colloque International du
C.N.R.S., n° 273. Etats Atomiques et Moléculaires cou-
plés à un continuum. Atomes et Molécules Hautement Excités
(1977) page 215 et suivantes. Editions du C.N.R.S.-Paris.
E. LUC-KOENIG, S. LIBERMAN et J. PINARD, Phys. Rev. A 20, 519 (1979).
- [83] P. CAMUS et C. MORILLON, J. Phys. B : Atom. Molec. Phys. 10, L133
(1977).
- [84] T. W. HÄNSCH, Appl. Opt. 11, 895 (1972).
- [85] C. FABRE, M. GROSS et S. HAROCHE, Opt. Commun. 13, 393 (1975).
- [86] W. E. COOKE et T. F. GALLAGHER, Phys. Rev. A 17, 1226 (1978).
- [87] C. E. MOORE, Atomic Energy Levels, NBS Circular n° 467, Vol. 1
(1949) (Washington D.C. : U S Govt Printing Office).
- [88] G. WENTZEL, Z. Physik 38, 518 (1926).
H. A. KRAMERS, Z. Physik 39, 828 (1926),
L. BRILLOUIN, C. R. Acad. Sci. Paris 183, 24 (1926).
- [89] H. A. BETHE et E. E. SALPETER, Quantum Mechanics of One- and Two-
Electron Atoms, Springer-Verlag - Berlin (1957).
- [90] C. LANCZOS, Z. Physik 65, 431 (1930).
- [91] H. RAUSCH et V. TRAUBENBERG, Z. Physik, 54, 307 (1929) ; 56, 254
(1929) ; 62, 289 (1930) ; 71, 291 (1931).
- [92] S. FENEUILLE, S. LIBERMAN, J. PINARD et P. JACQUINOT, C. R. Acad.
Sci. Paris 284B, 291 (1977).
S. LIBERMAN et J. PINARD, Phys. Rev. A 20, 507 (1979).

- [93] M. G. LITTMAN, M. M. KASH et D. KLEPPNER, Phys. Rev. Lett. 41, 103 (1978).
- [94] G. LEUCHS et H. WALTHER dans Laser Spectroscopy III, page 299 et suivantes, éditeurs J. L. Hall et J. L. Carlsten, Springer-Verlag - Berlin (1977).
- G. LEUCHS, S. J. SMITH et H. WALTHER dans Laser Spectroscopy IV, page 255 et suivantes, éditeurs H. Walther et K. W. Rothe, Springer-Verlag - Berlin (1979).
- [95] S. FENEUILLE, S. LIBERMAN, J. PINARD et A. TALEB, Phys. Rev. Lett. 42, 1404 (1979).
- [96] E. LUC-KOENIG et A. BACHELIER à paraître dans Phys. Rev. A.
- [97] R. R. FREEMAN, N. P. ECONOMU, G. G. BJORKLUND et K. T. LU, Phys. Rev. Lett. 41, 1463 (1978).
- R. R. FREEMAN et N. P. ECONOMU à paraître dans Phys. Rev. A (Déc. 1979).
- [98] T. F. GALLAGHER et W. E. COOKE, Phys. Rev. A 19, 694 (1979).
- [99] J. BONN, G. HUBER, H. J. KLUGE et E. W. OTTEN, Z. Phys. A 276, 203 (1976).
- [100] S. L. KAUFMAN, Opt. Commun. 17, 309 (1976).
- [101] K. R. ANTON, S. L. KAUFMAN, W. KLEMPPT, G. MORUZZI, R. NEUGART, E. W. OTTEN et B. SCHINZLER, Phys. Rev. Lett. 40, 642 (1978).
- [102] R. A. HOLT, S. D. ROSNER et T. D. GAILY, Phys. Rev. A 15, 2293 (1977).
- [103] S. D. ROSNER, T. D. GAILY et R. A. HOLT, Phys. Rev. Lett. 40, 851 (1978).

Parvenu au terme de cet exposé, je voudrais exprimer ma profonde gratitude à Monsieur le Professeur P. JACQUINOT pour l'accueil bienveillant qu'il m'a réservé au Laboratoire Aimé Cotton.

Je tiens à remercier Monsieur le Professeur P. JACQUINOT et Monsieur le Professeur S. FENEUILLE pour l'intérêt qu'ils ont porté à ce travail et pour les encouragements qu'ils m'ont prodigués au cours de sa réalisation.

Monsieur le Professeur J.-L. COJAN, Monsieur le Professeur S. HAROCHE et Monsieur R. KLAPISCH ont accepté de faire partie de ce jury, qu'ils trouvent ici l'expression de ma profonde reconnaissance.

Je voudrais réserver une place toute particulière dans ces remerciements à H. T. DUONG qui m'a guidé dans ce travail depuis mon arrivée au laboratoire. J'ai eu la chance de pouvoir profiter quotidiennement de son expérience et de ses connaissances et j'espère que cette collaboration fructueuse et amicale se poursuivra dans l'avenir. Ce travail est aussi le sien.

J'associe également à la présentation de ce travail S. LIBERMAN, J. PINARD et P. JUNCAR avec qui j'ai eu la chance de travailler au cours de la plupart des expériences qui viennent d'être décrites.

Je tiens à dire combien la collaboration avec les chercheurs et techniciens du Laboratoire René Bernas, dans le cadre des expériences sur les isotopes radioactifs, a été pour moi agréable et enrichissante. Que R. KLAPISCH, G. HUBER, C. THIBAUT, F. TOUCHARD, S. BUTTGENBACH, J.-F. KEPINSKI, M. JACOTIN et R. FERGEAU trouvent ici l'expression de mes sincères remerciements.

J'aimerais également remercier ici, même s'il m'est impossible de les citer, tous ceux qui m'ont, d'une manière ou d'une autre, aidé au cours de ce travail.

La conception et la mise au point de nombreux dispositifs expérimentaux, en particulier les appareils de jet atomique, doivent beaucoup à la compétence et à l'habileté de S. ROIZEN et R. BARONNET. Je les remercie très sincèrement ainsi que C. VIALLE qui m'a aidé dans ce travail avec efficacité et constance.

Je remercie M.-G. SCHWEIGHOFER et J. SINZELLE de l'aide qu'elles m'ont fournie pour les calculs sur ordinateur.

Je tiens à souligner combien le concours de l'ensemble du personnel technique du laboratoire m'a été précieux. Je remercie tout particulièrement ceux à qui j'ai fait le plus souvent appel : l'atelier de mécanique pour l'appareil de jet atomique et J.-L. TUTOU pour l'assemblage de cet appareil.

Enfin je remercie chaleureusement les personnes qui se sont chargées avec soin et diligence de la réalisation de ce mémoire : G. FONTAINE pour la dactylographie, B. DEMARETS, H. CALVIGNAC et M. REY pour l'illustration.

ANNEXE I

PHYSICAL REVIEW LETTERS

VOLUME 33

5 AUGUST 1974

NUMBER 6

Measurement of the Hyperfine Structure of the $5^2S_{1/2}$ State of ^{23}Na by Two-Step Excitation Using Two cw Dye Lasers

H. T. Duong, S. Liberman, J. Pinard, and J.-L. Vialle

Laboratoire Aimé Cotton, Centre National de la Recherche Scientifique II, 91405-Orsay, France

(Received 30 April 1974)

We report a direct measurement of the hyperfine splitting of the $5^2S_{1/2}$ state in sodium using a two-step excitation of an atomic beam with two cw tunable dye lasers. The linewidth obtained is 24 MHz and we measure a hyperfine splitting $\Delta\nu(5^2S_{1/2}) = 159 \pm 6$ MHz, in good agreement with the theoretical value.

As noted in a recent paper by Liao, Gupter, and Happer,¹ the measurements of the hyperfine structure of sequences of excited states in light alkaline atoms are of particular interest. In that paper, the authors report the first measurement of the $4^2S_{1/2}$ state of sodium using the method of cascade rf spectroscopy and show the difficulties of populating the $4^2S_{1/2}$ level of sodium. In this Letter, we report a direct measurement of the hfs of the $5^2S_{1/2}$ level of sodium using a purely optical method.

The principle of our method is illustrated on the atomic level scheme of Na I (Fig. 1). In order to populate selectively the hyperfine levels of the $5^2S_{1/2}$ state, which cannot be reached from the ground state by a single-step excitation, we use a two-step excitation via the $3^2P_{1/2}$ state. This type of method has been used to measure the lifetime of the D levels in Na I,² but in that case pulsed dye lasers with broad spectral bandwidths were used. Our method is a generalization of the method of spectroscopy using a single-step excitation with detection by fluorescence.^{3,4} In that case, as in ours, the spectral width of the exciting laser (a few MHz) must be comparable or less than the natural linewidth of the transition considered. Another new method, first proposed by Vasilenko, Chebotaev, and Shishehev,⁵

to populate a level not connected to the ground state (two-photon spectroscopy using two-photon absorption) and to obtain a result without Doppler broadening has been developed⁶ and has recently given the first experimental results⁷⁻⁹; we will compare the different results later. In our meth-

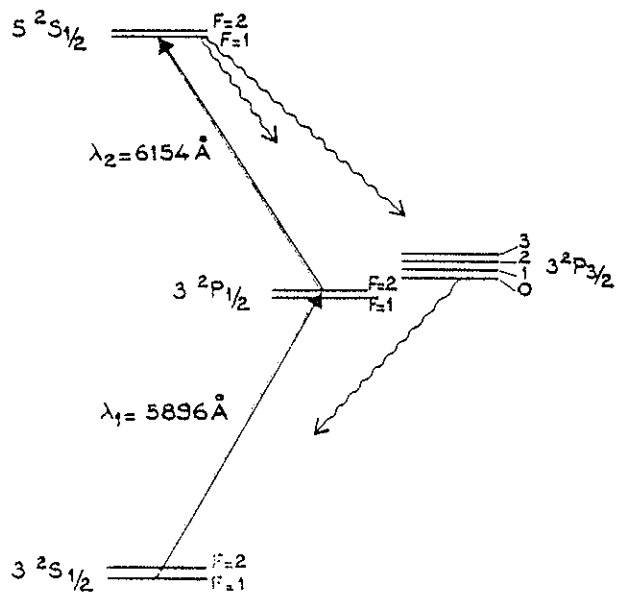


FIG. 1. Level diagram of Na.

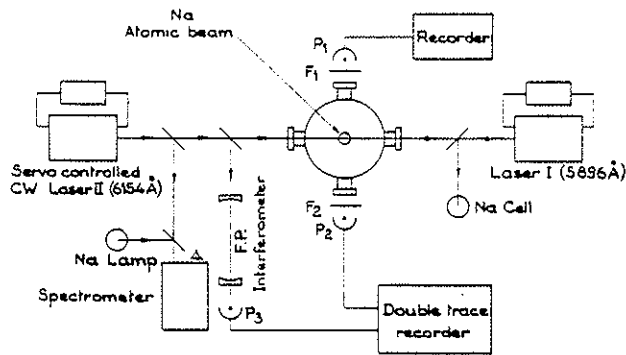


FIG. 2. Double-step-excitation experimental setup. The filters F_1 and F_2 transmitted respectively the lines at 5896 and 6154 Å.

od, the first laser (frequency ν_1) is locked on a hyperfine transition of the D_1 line at 5896 Å and the second laser (frequency ν_2) is scanned continuously over the entire structure of the $3^2P_{1/2} \rightarrow 5^2S_{1/2}$ line at 6154 Å. When the laser frequency ν_2 is tuned to a hyperfine transition from the state with $F=1$ or $F=2$ of the $5^2S_{1/2}$ level, the emitted fluorescent light following the decay to the lower levels is detected and recorded as a function of the frequency ν_2 ; The signal, which is proportional to the population of the upper hyperfine levels, gives a representation of the level spectrum of $5^2S_{1/2}$.

Figure 2 shows our experimental setup. We use an atomic beam of sodium with a 300/1 collimation ratio.¹⁰ The two cw dye lasers are identical and have been described earlier¹¹; they are single mode and the output power is of the order of a few milliwatts. We remark that high power density is not desirable; we have effectively observed a power broadening if the laser light is focused on the atomic beam. A calculation of the laser power required in order to get an appreciable broadening has been done by Feneuille¹² and is in good agreement with our observations. The ability of our lasers to scan continuously over 15 GHz makes the experiments relatively easy. The two laser beams are sent collinearly and in opposite directions on the atomic beam. The fluorescent light is observed perpendicular to the laser beams by two photomultipliers. The signal given by the first one, looking at the fluorescence at 5896 Å from the $3^2P_{1/2}$ level, is used to adjust ν_1 to the absorption frequency of one of the four hyperfine components of the D_1 line of interest. The second photomultiplier looks at the fluorescence from the $5^2S_{1/2}$ level. The intensity

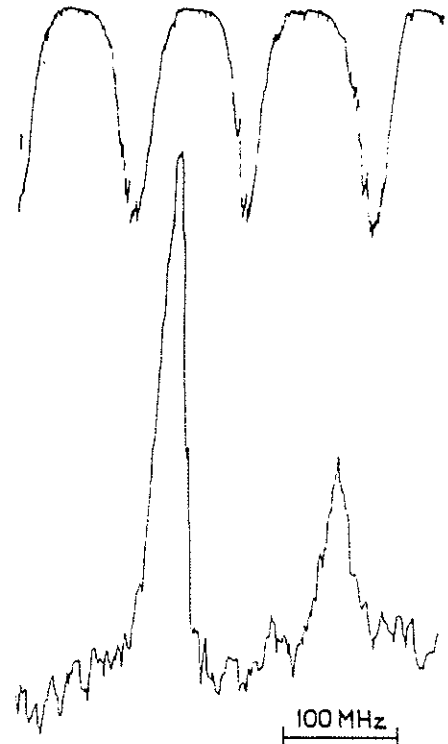


FIG. 3. hfs of the $5^2S_{1/2}$ level [$5^2S_{1/2} (F=1, 2) \rightarrow 3^2P_{1/2} (F=2)$]. The upper trace shows the reference fringes.

of this fluorescent light is recorded as a function of the frequency ν_2 ; for this purpose, a portion of the laser beam at 6154 Å is sent into a Fabry-Perot interferometer with a free spectral range of 103 MHz, and the recorded fringe signal gives the calibration scale.

A single recording of the $5^2S_{1/2}$ hfs is shown in Fig. 3. The linewidth, 24 MHz, is close to the one expected by taking into account the residual Doppler width and the combined width of the two cw lasers. Theoretically the intensity of the two components must be the same; the anomalous intensity ratio observed is probably due to optical-pumping effects related to the use of polarized light and we intend to investigate this effect in the near future. One recording of the hfs structure takes about 1 min; this has to be compared to a recording time of about 3 h by the method of cascade rf spectroscopy. The mean value of the measured hyperfine splitting for ten recordings is 159 MHz with an uncertainty of ± 6 MHz, in perfect agreement with the theoretical value of 157 MHz obtained using the Fermi-Segre formula.

If we now compare our results to the results obtained in Refs. 7-9, we can make some observa-

tions.

Two-photon absorption spectroscopy requires a high-power laser; thus, this method still suffers from some practical limitations. Moreover, the selection rule in two-photon spectroscopy is more restrictive and, for example, the $5^2S_{1/2}$ hfs in sodium cannot be measured directly.

We hope to have shown that this method of very high-resolution spectroscopy of excited states is a very promising one. It is clear that its application is not limited to the relatively narrow frequency range of cw tunable lasers and can be extended from near uv to infrared by using pulsed dye lasers or parametric oscillators operating in a single mode.

We wish to thank M. Baronnet for his continued and skillful technical assistance.

¹K. H. Liao, R. Gupta, and W. Happer, *Phys. Rev. A* **8**, 2811 (1973).

²W. Gornik, D. Kaiser, W. Lange, J. Luther, H. H.

Radloff, and H. H. Schulz, *Appl. Phys.* **1**, 285 (1973).

³W. Hartig and H. Walther, *Appl. Phys.* **1**, 171 (1973).

⁴W. Lange, J. Luther, B. Nottbeck, and H. W. Schröder, *Opt. Commun.* **2**, 157 (1973).

⁵L. S. Vasilenko, V. P. Chebotaev, and A. V. Shishaev, *Pis'ma Zh. Eksp. Teor. Fiz.* **12**, 161 (1970) [*JETP Lett.* **12**, 113 (1970)].

⁶B. Cagnac, G. Grynberg, and F. Biraben, *J. Phys. (Paris)* **34**, 56 (1973).

⁷D. Pritchard, J. Apt, and T. W. Ducas, *Phys. Rev. Lett.* **32**, 641 (1974).

⁸F. Biraben, B. Cagnac, and G. Grynberg, *Phys. Rev. Lett.* **32**, 643 (1974).

⁹M. D. Levenson and N. Bloembergen, *Phys. Rev. Lett.* **32**, 645 (1974).

¹⁰Since the first-step excitation populates the $3P$ level only with atoms of a given longitudinal velocity range, it should not be necessary to use an atomic beam to reach a resolution beyond the Doppler limit; but in that case some parasitic lines could appear if the intermediate level is not single. We plan to do some experiments with a sodium vapor cell.

¹¹S. Liberman and J. Pnard, *Appl. Phys. Lett.* **24**, 3 (1974).

¹²S. Feneuille, to be published.

ANNEXE II

ATOMIC-BEAM DEFLECTION AND BROADENING BY RECOILS DUE TO PHOTON ABSORPTION OR EMISSION

J.-L. PICQUÉ and J.-L. VIALLE

Laboratoire Aimé Cotton, C.N.R.S. II, 91 - Orsay, France

Received 10 May 1972

An atomic-beam experiment, based on momentum transfer between photons and atoms during resonant interaction, is described. Curves providing the first direct experimental evidence in the optical region of the isotropic recoil effect in spontaneous emission, have been obtained. Other curves show the possibility of deflecting an atomic beam with sufficient efficiency to give a new method of detection of optical resonance. Some spectroscopic applications, also valid for atoms with a diamagnetic ground state, are considered.

In this paper we describe an atomic-beam deflection experiment based on exchange of momentum during resonant interaction with light. The experiment was carried out several decades ago by Frisch, who stated at the end of his publication [1] that the experiment should be repeated in order to obtain "clearer and more conclusive results". Indeed, we have observed a clearer deflection of a transversely illuminated beam by the resonance light and, furthermore, we have isolated the only effect of spontaneous emission; the use of a light element (sodium) and of a heavy element (cesium) enables comparisons to be made. Recently, Ashkin suggested the use of radiation pressure to produce, under saturation conditions, a constant central force field acting on an atomic beam [2]. Our experiment does not reach these conditions, as we have used classical light sources, emitting mainly D_1 and D_2 lines.

When absorption of a photon with frequency ν takes place, the atom acquires a linear momentum $p = h\nu/c$ in the direction of this photon. Consecutively, a new photon can be re-emitted in two different ways: by stimulated emission, in which case the atom takes a recoil momentum opposite to the previous one, and its trajectory is only subjected to a very weak translation; by spontaneous emission, in which case the recoil momentum of magnitude p is scattered in random directions. The "effective processes" contributing to the de-

flection of a beam consist then in an absorption followed by a spontaneous emission. The angle of deviation corresponding to the transfer of the transverse momentum p to an atom of mass m and velocity v is $\alpha = p/mv$; this is typically of the order of 10^{-5} radians. The smallness of this angle explains the need for the use of a very well-defined beam direction, and a very narrow detector.

Our apparatus (fig. 1) comprises, at one end, a copper oven with a slit 100 microns wide and, at the other end, a surface ionization detector consisting of a wolfram wire of 10 microns diameter, run red hot. The hot wire can be moved transversely, controlled by a micrometer graduated in microns. The beam collimation is made with the use of two slits F_1 and F_2 , 30 cm apart: the first one, with a fixed width of 10 microns, can be translated as a unit; the jaws of the second one can be moved separately, allowing the maximum aperture of 10 microns used in the experiment. The slits F_1 and F_2 are put on rotatable mountings. All these motions are carried out in a reproducible and measurable way with the use of a micrometer screw. Next to the slit F_2 is a glass tube that allows the illumination of the atoms by three spectral lamps: these are placed between 70 and 55 cm from the detector and at less than 2 cm from the beam axis. Three main diffusion pumps, shown in fig. 1, maintain a pressure of 1 to

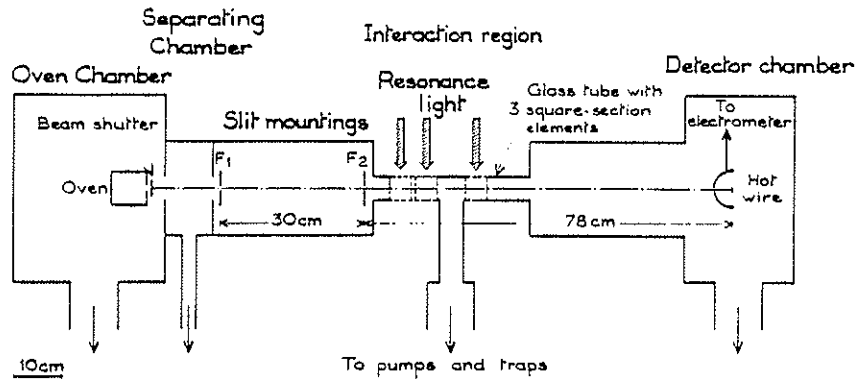


Fig. 1. Schematic diagram of the atomic-beam apparatus.

3×10^{-7} torr in the different parts of the apparatus.

As in other atomic-beam experiments [3], the different elements determining the axis of the beam were first aligned with a telescope, then with the help of the beam itself. The hot wire being taken as a point of reference, the direction of the two slits and the position of the slit F_1 had to be adjusted by systematic trials so that the three elements were as colinear and as parallel as possible. The optimum alignment, very sharp with respect to rotations of the slits, corresponded obviously to the maximum of the top of the "beam shape" (distribution of the number of detected atoms as a function of the transverse position of the detector) and to the minimum width of this distribution. The narrowness of the beam could then be adjusted by symmetrical displacement of the jaws of the slit F_2 .

In the limit when the detector is infinitely narrow, the undeflected beam shape would be trapezoidal [3], with a width at half maximum of 36 microns for a width of the two collimating slits equal to 10 microns. The deflected beam shape should be broadened for several reasons: the angular spread of the velocities of the atoms and principally of the light rays, the maxwellian beam velocity distribution. Another broadening factor is fundamental in origin: that is the spherical symmetry of spontaneous emission. The component of the recoil momentum along a given axis, imparted to the atom upon spontaneous emission, can have all values between $-p$ and $+p$.

We carried out the experiment with sodium and cesium atomic beams, produced respectively at temperatures of 360°C and 200°C , providing equivalent inten-

sities. The deflection $\delta = (h/\lambda m \bar{v})d$ at the distance d , associated with a photon absorption by an atom moving with the average velocity in the beam is then, if $d = 70$ cm, 23 microns for sodium ($\bar{v} = 900$ m/sec), 7.5 microns for cesium ($\bar{v} = 320$ m/sec). Figs. 2 and 3 show, in the case of these two elements, the shape of the direct beam and the shape of the beam deflected when irradiated in the plane orthogonal to the height of the slits. The signal measurements were carried out

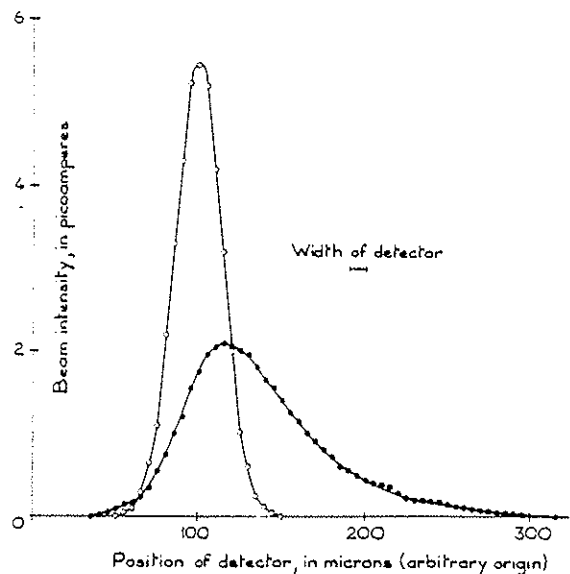


Fig. 2. Sodium beam shape, \circ before illumination, \bullet deflected by resonance light.

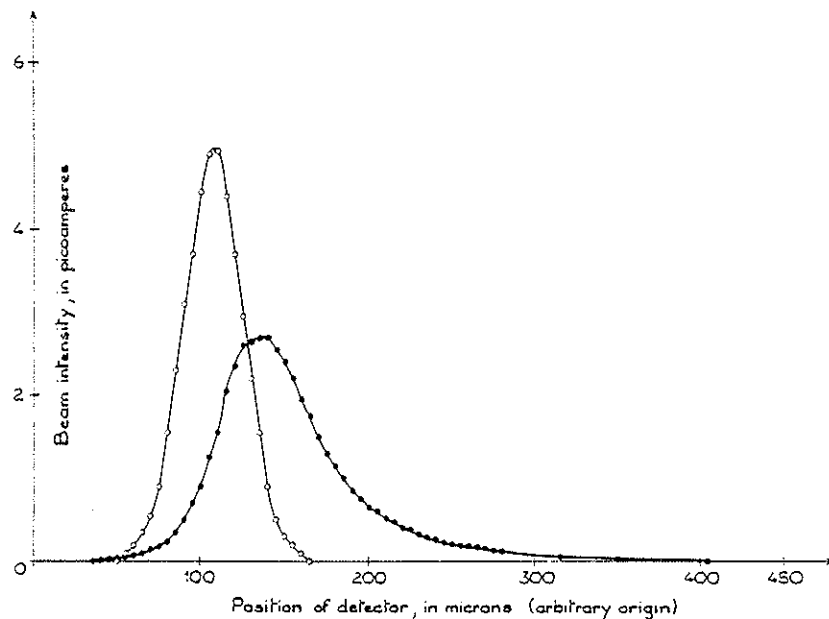


Fig. 3. Cesium beam shape, \circ before illumination, \bullet deflected by resonance light.

successively with the resonance light on and then off, in each position of the detector, at steps of 5 microns. The undeflected beam intensity pattern is slightly rounded because of the appreciable width of the detector, but its width (30 to 40 microns according to the experiments) is not greater than the expected theoretical value. The deflected beam exhibits an asymmetrical shape clearly distinct from the one of the direct beam. The decrease in signal induced by the light at the centre of the undeflected distribution is 68% for sodium and 72% for cesium. The slight overlapping in the left wings of the curves comes from the light rays with smaller inclination with respect to the beam axis. The displacement between the average values of the two distributions is 36 microns for sodium and 46 microns for cesium; that is, in taking δ as the unit: 1.5 in the case of sodium against 6 in the case of cesium. That is, related to the light intensity used in beam excitation, greater with the cesium vapor lamps (electrodeless discharge lamps [4]) than with the sodium vapor lamps (Philips commercial lamps). In using the same light sources in a Rabi-type atomic-beam experiment [5], we had noted previously an absorption signal greater for cesium by a factor of the order of 10, for an equal beam density and thickness. Fig. 4 shows

the modification of the sodium beam shape when irradiating the atoms in the plane that contains the two slits and the detector. Under these conditions, we only observe the broadening due to the isotropic recoil effect in spontaneous emission; the absorption, which deflects the atoms in the symmetry plane, no longer has an observable effect. The broadened curve remains symmetrical and its axis does not differ from that of the initial curve. The broadening is naturally accompanied by a reduction of the maximum (of 39%) and a raising of the bottom of the distribution. Moreover, one can verify that the area under each pair of curves in figs. 2, 3 and 4 is the same, which simply expresses the conservation of the number of atoms.

Simple arguments based on the Einstein coefficients A and B give an estimate of the number of "effective processes" occurring to an atom per unit time: $N = 1/\tau (kx + 1)$, where x , saturation parameter, is an effective value related to the ratio $x(\nu) = Bw(\nu)/A$, $w(\nu)$ is the spectral energy density per unit volume at frequency ν ; τ is the radiative lifetime of the resonance level; $k = 1 + g_1/g_2$ depends on the degeneracy factor for the lower and upper states. The number of "effective processes" which take place on the average in the interaction region of length l is then $n = N l/\bar{v}$. To

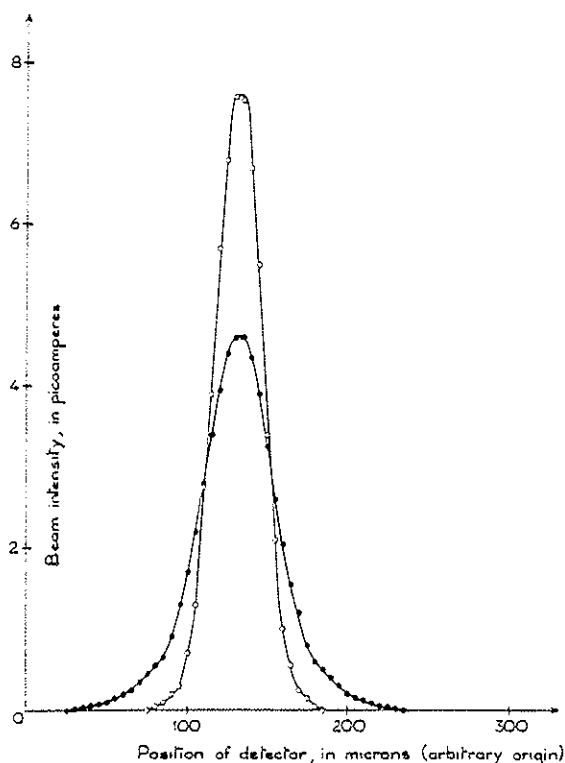


Fig. 4. Sodium beam shape, ○ before illumination; ● broadened by resonance light.

estimate x , the solid angle intercepted by the illuminated beam area has to be taken into account (the angular spread of the light rays is large in the direction of the beam, but the rays with small inclination with respect to the beam axis are less efficient), and also the high collimation of the beam: if Γ is the Doppler width of the lines emitted by the source and γ their natural width, the beam only absorbs a fraction of the order of γ/Γ of the light which irradiates it. By taking for each one of the three lamps a forward photon flux of 10^{17} photons per second [4], we obtain $n \approx 1$, in reasonable agreement with the experimental observations. Let us suppose that one illuminates the beam perpendicularly with the beam emitted by a dye laser, operating in single mode (of 40 mW intensity) interacting selectively with a two-level hyperfine system included in one of the two resonance lines [2]: a stability of 180 MHz [6] would be sufficient for this mode

so that the energy which is contained on the average in the absorption band would be such that $x \approx 1$ (2/3 of the saturation) and $n \approx 75$; but only a fraction of the atoms would be influenced.

The deflection technique of an atomic beam by resonant collisions with photons can be considered as a new means, very simple in principle, of detecting optical resonance. The resonance signal would consist in the reduction of the number of detected atoms in the presence of transverse irradiation, the detector remaining at the centre of the direct beam. Another technique has already been exploited [7], based on the model of Rabi-type magnetic resonance experiments using two inhomogeneous magnetic fields: in the central region of the apparatus, the resonance radiation plays the part of the radiofrequency field in causing a change in the magnetic moment in the ground state of a part of the atoms which have been excited, and consequently a change in their trajectory. The main disadvantage of the new method comes from the extreme narrowness of the beam (at least to the extent that no highly intense radiation is used, which would permit the widening of the slits): for the same element (sodium) and the same light source, if the resonance signal were extrapolated (to the same number of atoms coming out of the oven and to the same number of lamps situated at the same distance from the beam), it would be about 10^{10} atoms per second in a "flop-in" experiment [5], against 2×10^7 atoms per second (fig. 2). But, on the other hand, the new method presents the advantage of being usable for the atoms without resulting electronic magnetic moment in the ground state*.

In spite of the recent development of techniques using saturated absorption, which also allows us to avoid Doppler effect, the atomic-beam methods with detection on the atoms remain of interest in optical spectroscopy, especially for work with radioisotopes. But these spectroscopic applications (high-resolution measurements of isotope shifts and hyperfine structures of excited levels by selective optical absorption), the precision of which is in theory only limited by the natural linewidth, imply the use of a spectral band of

* For some of these atoms which can return to paramagnetic states after optical excitation, a magnetic deflection method is also possible [8].

light energy that would be at the same time narrow, stable in frequency and sufficiently intense. A systematic application supposes then the use of lasers satisfying these conditions and having tunable frequency over a broad range.

References

- [1] R. Frisch, *Z. Physik* 86 (1933) 42.
- [2] A. Ashkin, *Phys. Rev. Letters* 25 (1970) 1321.
- [3] N.F. Ramsey, *Molecular beams* (Clarendon Press, Oxford, 1969).
- [4] W.E. Beil, A.L. Bloom and J. Lynch, *Rev. Sci. Instr.* 32 (1961) 688.
- [5] H.T. Duong and J.L. Picqué, *J. Phys. (Paris)* 33 (1972), to be published.
- [6] M. Hercher and H.A. Pike, *Opt. Commun.* 3 (1971) 346.
- [7] R. Marrus and D. M. McColm, *Phys. Rev. Letters* 15 (1965) 813;
R. Marrus, E. Wang and J. Yellin, *Phys. Rev. Letters* 19 (1967) 1.
- [8] H.H. Stoke, *Commun. Atom. Mol. Phys.*, to be published.

ANNEXE III

OPTICAL RESOLUTION OF THE HYPERFINE STRUCTURE OF THE Na D LINES BY ATOMIC BEAM ABSORPTION FROM A CW TUNABLE DYE LASER

H.T. DUONG, P. JACQUINOT, S. LIBERMAN, J.L. PICQUÉ, J. PINARD and J.L. VIALLE
Laboratoire Aimé Cotton, C.N.R.S. II, 91405 - Orsay, France

Received 12 February 1973

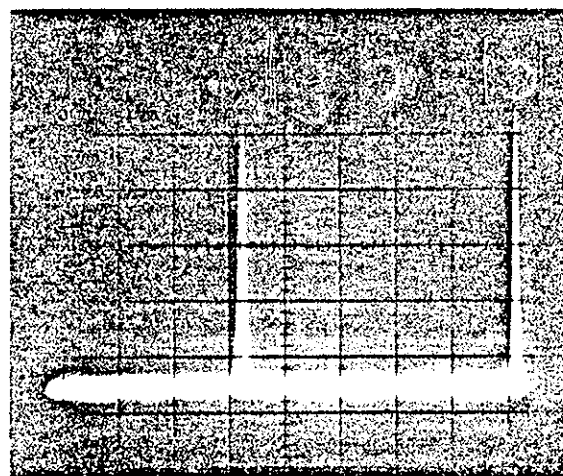
An optical spectroscopic experiment, allowing a resolution of at least 20 MHz, is described. A cw tunable dye laser with very high frequency stability is used in conjunction with a Rabi type sodium atomic beam. The experimental linewidth was only limited by the natural width of the sodium resonance lines. The hyperfine structure of the $3^2P_{3/2}$ state of sodium has been resolved, for the first time with a purely optical technique.

We report in this letter some results of an ultra high resolution spectroscopic experiment using a cw single mode dye laser, the frequency of which is servo-controlled and continuously tuned. The experiment was performed on a Rabi type sodium atomic beam, and shows the resolved hyperfine structure of the D_1 and D_2 lines.

A dye laser (whose configuration is similar to the one described in ref. [1]) utilizes rhodamine 6G continuously pumped by the green line ($\lambda = 514.5$ nm) of an argon-ion laser. The dye solution flows at high speed through a cell of 1 mm thickness, closed with antireflection coated sapphire windows. In the best conditions, the threshold pump power is about 350 mW. The maximum output power of the dye laser is around 50 mW (with a pump power of 1.5 W). Thanks to an intracavity selective element, the laser can oscillate on a single mode if the pump power is not too high (less than 1 W). In this case, the output power on a single mode is a few milliwatt. The oscillating wavelength can be chosen in the range between 570 and 610 nm. On single mode operation, the frequency of the dye laser is servo-controlled by using a very stable external Fabry-Pérot interferometer. When controlled in this manner, the amplitude of frequency fluctuations of the laser mode is certainly smaller than 15 MHz, as can be seen on the oscillogram of fig. 1. In addition, the intensity fluctuations of the servo-controlled mode do not exceed 10% for time intervals of several minutes.

The continuous scanning range is larger than 5000 MHz, and is obtained by a synchronous displacement of one end mirror of the laser cavity and of the band-pass of the selective element inside the laser. This displacement is governed by a regular scanning of the length of the external passive cavity. A complete description of our laser cavity and of our servo-control system will be published later.

The laser light is used for pumping sodium atoms



150 MHz per cm.
Fig. 1. Scanning Fabry-Pérot analysis of the output of our single mode dye laser.

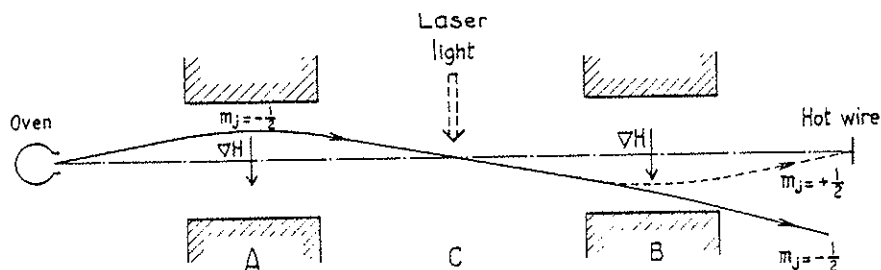


Fig. 2. The atomic beam method.

of an atomic beam. Our method is the analogue in the optical range of the Rabi magnetic resonance method. The apparatus (fig. 2) contains two magnets A and B producing two-wire type inhomogeneous magnetic fields with gradients of the same direction ("flop-in" geometry). In the intermediate C region, the laser light, tuned on one of the resonance wavelengths, plays the part of the radio-frequency field in Rabi experiments. The detected atoms are those which have undergone a "spin-flip" in the C region, which allows them to be refocused onto the detector. In an optical experiment, these atoms are the ones which are excited from some magnetic sublevel and fall after spontaneous emission to another magnetic sublevel, with an effective magnetic moment of opposite sign [2]. The transitions used in the case of sodium are from the ground $3^2S_{1/2}$ state to the first excited $3^2P_{1/2}$ and $3^2P_{3/2}$ states (D lines). All of these states are split into hyperfine levels (fig. 3). We observe a signal when the frequency of the laser mode comes into resonance with the frequency of a hyperfine transition that allows the "optical pumping" from a state of $m_j = -1/2$ ($m_j = +1/2$) to a state of $m_j = +1/2$ ($m_j = -1/2$). The atomic beam has a high collimation which leads to a small angular spread of atomic velocities; the Doppler width is therefore much smaller than the natural width of the lines.

Typical results are shown in fig. 4 for the two D lines. Numerous recordings have ensured us of the good reproducibility of the observations, as well in frequency as in intensity. From these results, one can easily obtain the hyperfine splittings in the $2^2P_{1/2}$ and $2^2P_{3/2}$ states. A rough calibration of the frequency scale leads to the following approximate values of the splittings: 190 MHz for $2^2P_{1/2}$ ($F = 1, F = 2$), and for

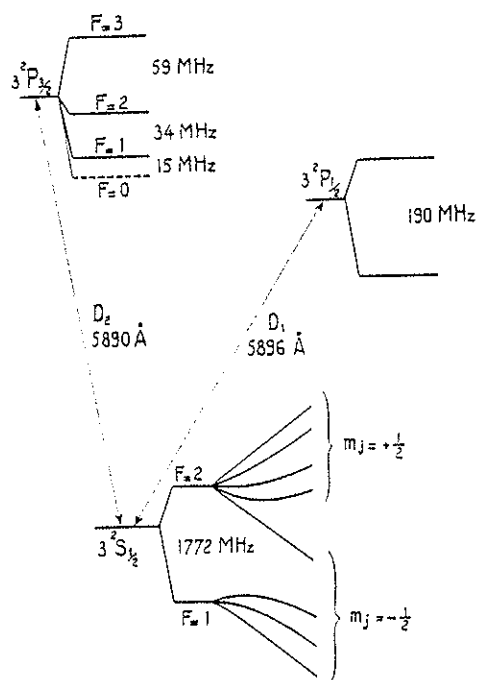


Fig. 3. Hyperfine structure of sodium resonance lines, not drawn to scale. (The dotted line is the unobserved level.)

$2^2P_{3/2}$: 59 MHz ($F = 2, F = 3$) and 34 MHz ($F = 1, F = 2$). These values are consistent with those previously measured using double-resonance [2, 3] and level-crossing [4] methods. The half-width which we have recorded for the components of the D_1 line is about 20 MHz, a value very close to the natural line-width. The relative intensities are consistent with the calculated values. One should notice that our means of detecting the optical resonance does not allow us

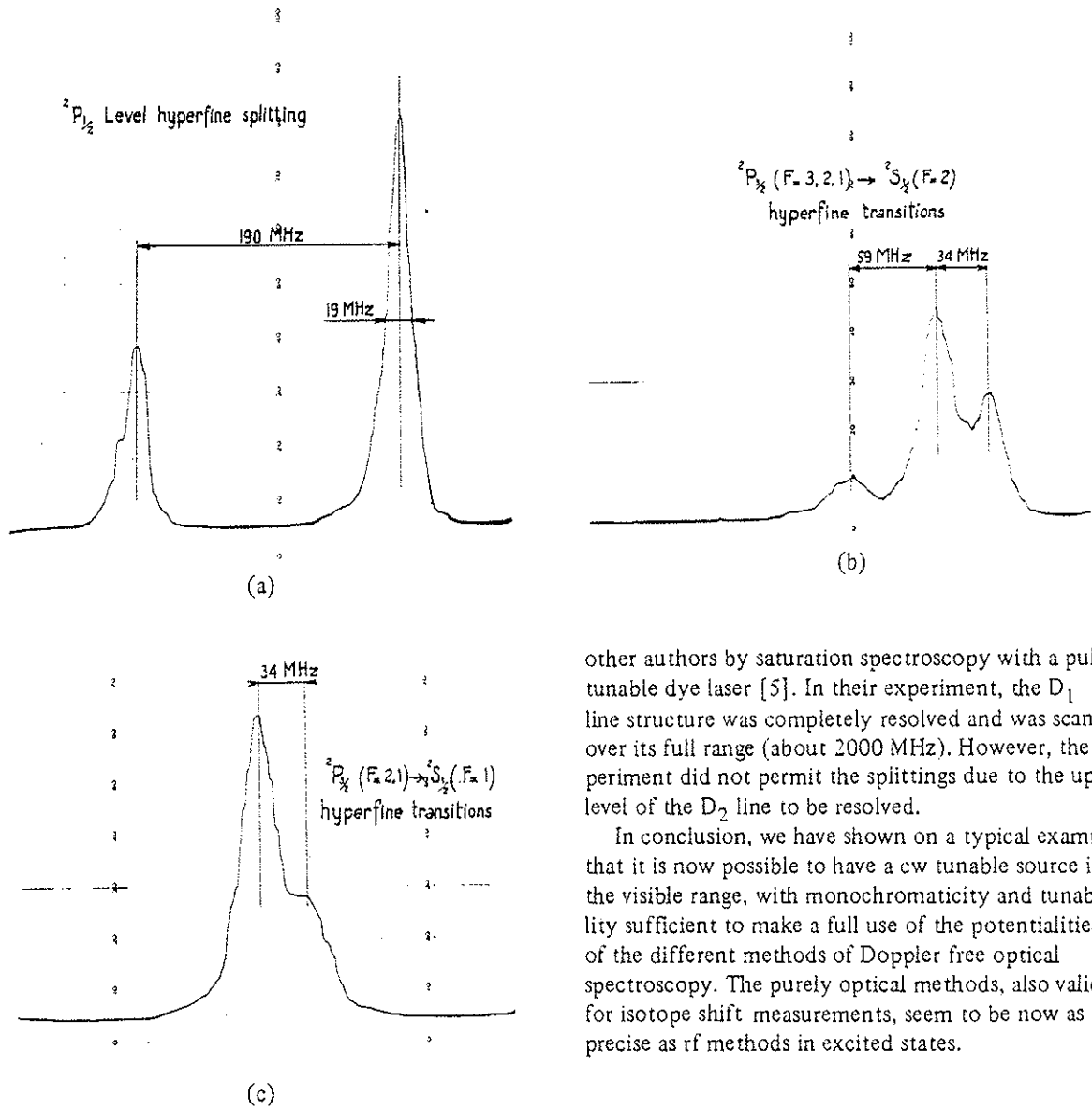


Fig. 4. Experimental resonance curves. In the two recordings shown for the D₂ line, the splitting between the $^2P_{3/2}$ ($F = 2, 1$) levels is differently resolved, due to different relative intensities.

to observe the $^2P_{3/2}$ $F = 0$ level, which is only coupled by electric dipole transitions to the $F = 1$ level (with only $m_j = -1/2$ sublevels) of the ground state. These results have to be compared to those obtained by

other authors by saturation spectroscopy with a pulsed tunable dye laser [5]. In their experiment, the D₁ line structure was completely resolved and was scanned over its full range (about 2000 MHz). However, the experiment did not permit the splittings due to the upper level of the D₂ line to be resolved.

In conclusion, we have shown on a typical example that it is now possible to have a cw tunable source in the visible range, with monochromaticity and tunability sufficient to make a full use of the potentialities of the different methods of Doppler free optical spectroscopy. The purely optical methods, also valid for isotope shift measurements, seem to be now as precise as rf methods in excited states.

References

- [1] M. Hercher and H.A. Pike, Opt. Commun. 3 (1971) 346.
- [2] M.L. Perl, I.I. Rabi and B. Senitzky, Phys. Rev. 98 (1955) 611.
- [3] M. Baumann, W. Hartmann, H. Krueger and A. Oed, Z. Physik 192 (1966) 270.
- [4] G. Copley, B.P. Kibble and G.W. Series, J. Phys. B 1 (1968) 724.
- [5] T.W. Hänsch, I.S. Shahin and A.L. Schawlow, Phys. Rev. Letters 27 (1971) 707.

ANNEXE IV

NOUVELLE METHODE DE DETECTION DES RESONANCES OPTIQUES PAR DEVIATION MAGNETIQUE D'UN JET ATOMIQUE

H.T. DUONG et J.-L. VIALLE

Laboratoire Aimé Cotton, C.N.R.S. II, Bât. 505, 91405-Orsay, France

Reçu le 1. Juillet 1974

We propose a method to be used in the investigation of the hyperfine structure and isotope shift of ^{25}Na . This method has been tested with a ^{23}Na beam and the limit of the signal-to-noise ratio expected with this method is discussed.

La méthode proposée se place dans le cadre des méthodes de détection non optique des résonances optiques développées au cours de ces dernières années au Laboratoire Aimé Cotton [1-3]: elle a été développée spécialement en vue de la mesure de la structure hyperfine et du déplacement isotopique des raies D de l'isotope ^{25}Na ($T = 1$ min). Mais elle est d'un emploi plus général et on en donnera ici le principe ainsi que les résultats préliminaires obtenus avec le ^{23}Na stable. Elle utilise comme la méthode de Rabi [4], la modification des trajectoires atomiques dans un champ magnétique inhomogène consécutive à une absorption optique qui, par effet de pompage, change l'état magnétique fondamental. Mais en raison du petit nombre d'atomes disponibles (environ 10^8 pour ^{25}Na produit à Orsay) il est nécessaire de se contenter d'un taux de collimation faible afin de gagner sur l'ouverture du jet atomique ce qui rend la méthode décrite en [1] inutilisable. La méthode de photoionisation [3] qui permettrait d'utiliser un jet assez ouvert restera peu adaptée aux raies D du sodium avec si peu d'atomes tant qu'on ne disposera pas de lasers intenses de longueur d'onde voisine de la limite d'ionisation à partir du niveau 3P ($\lambda = 4082 \text{ \AA}$). Nous avons donc cherché à conserver le principe de la déviation magnétique tout en utilisant un jet atomique ouvert. Ceci peut être obtenu si on supprime le premier champ inhomogène (région "A"), le deuxième champ inhomogène (région "B") de révolution est produit par un aimant hexapolaire servant à sélectionner les atomes se trouvant dans l'un des

deux états $m_f = \pm 1/2$ du niveau fondamental.

Il faut noter que notre méthode s'apparente à la méthode proposée par Bucka et Zimmerman pour l'étude de la résonance magnétique dans les états excités [5, 6], et dans laquelle la région A est également supprimée. la préparation des atomes dans un état donné étant obtenue par excitation avec de la lumière polarisée circulairement (dans la méthode de Cerez et al. [7] l'excitation et l'absorption en lumière circulaire sont utilisées pour la préparation et la détection des atomes dans des états donnés).

La fig. 1 donne le schéma de notre expérience. La vapeur de sodium sort d'un four, chauffé à 230°C . par une ouverture de 1 mm de diamètre et les atomes se propagent en ligne droite dans une enceinte où règne un vide de l'ordre de 10^{-6} mm de Hg. La collimation du jet est réalisée par un trou de 2 mm de diamètre, percé dans une plaque portée par un tube refroidi à

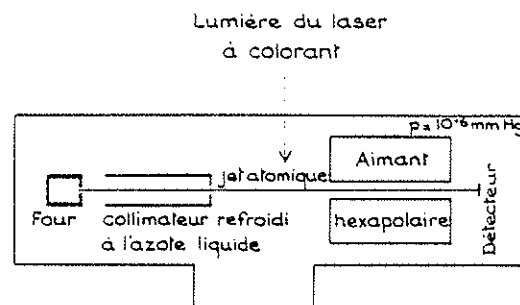


Fig. 1. Schéma de l'appareil.

l'azote liquide. Ceci pour éviter une diffusion trop importante du sodium dans l'enceinte; le trou de 2 mm de diamètre ne limite en rien l'ouverture utilisable de l'aimant hexapolaire. Le jet est éclairé perpendiculairement par la lumière d'un laser à colorant accordable, monomode et stable [8]. Le jet traverse ensuite un aimant hexapolaire de 152 mm de long, d'entrefer 5 mm et de champ magnétique maximum 7000 gauss. Les atomes de sodium sont détectés à la sortie par ionisation de surface sur un ruban d'iridium de 5 mm de large chauffé directement.

Les atomes de sodium, traversant l'aimant hexapolaire, passent d'une région de champ faible (extérieur de l'aimant à une région de champ fort (intérieur de l'aimant), ce passage peut être considéré comme "adiabatique"; les atomes évoluent alors d'un état propre en champ faible à un état propre en champ fort en suivant les courbes d'énergie schématisées sur la fig. (2). On voit sur cette figure que tous les atomes du niveau hyperfin $F = 1$ ont $m_J = -1/2$ en champ fort et que 80% des atomes du niveau hyperfin $F = 2$ ont $m_J = +1/2$ en champ fort. Comme l'aimant hexapolaire présente des propriétés focalisantes pour les atomes ayant $m_J = +1/2$ et défocalisantes pour ceux ayant $m_J = -1/2$ [9], le signal vu par le détecteur dépend du rapport des populations des niveaux hyperfins $F = 1$ et $F = 2$. C'est précisément sur ce rapport

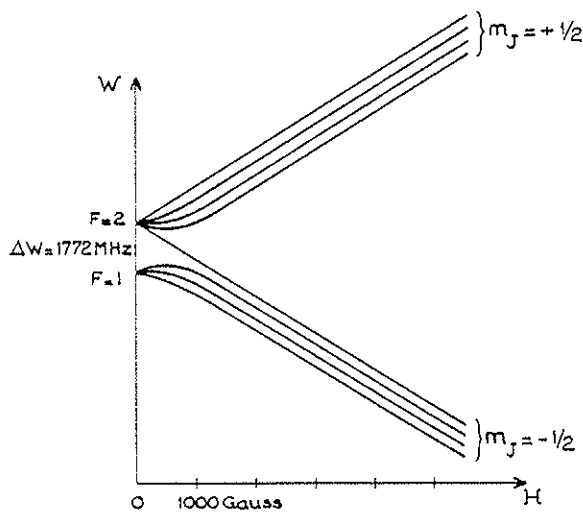


Fig. 2. Schéma de la décomposition Zeeman du niveau fondamental de ^{23}Na .

de populations qu'agit le pompage optique hyperfin, qui sert d'intermédiaire à la détection des transitions hyperfins $S \rightarrow P$.

Soient T_+ et T_- , la fraction d'atomes issus de la source et arrivant sur le détecteur après avoir traversé l'aimant hexapolaire, respectivement pour les atomes ayant $m_J = +1/2$ et $m_J = -1/2$, tels que $T_+ \gg T_-$.

Pour un jet où les niveaux hyperfins avec $F = 2$ et $F = 1$ sont peuplés dans le rapport des poids statistiques, le signal vu par le détecteur sera

$$\frac{1}{8}(4T_+ + 4T_-) = \frac{1}{2}(T_+ + T_-).$$

Pour un jet de même intensité mais dont tous les atomes se trouvent sur le niveau hyperfin $F = 2$, le signal sera:

$$\frac{3}{8} \cdot \frac{1}{8}(4T_+ + T_-) = \frac{1}{2}(4T_+ + T_-).$$

Pour un jet de même intensité mais dont tous les atomes se trouvent sur le niveau hyperfin $F = 1$, le signal sera $\frac{3}{8} \cdot \frac{1}{8}T_- = T_-$. Par conséquent en supposant que la lumière est suffisamment intense pour réaliser un pompage optique totalement efficace, lorsque la fréquence de la lumière laser est accordée sur une transition partant du niveau $F = 1$ on doit avoir un accroissement du signal de 60% si $T_- = 0$; lorsqu'elle est accordée sur une transition partant du niveau $F = 2$, on doit avoir une baisse du signal de 100% si $T_- = 0$.

On observe effectivement un groupe de deux raies "positives" et un groupe de deux raies "négatives" lorsque la fréquence du laser accordable explore la structure de la raie D_1 (fig. 3). Pour calculer les intensités relatives des signaux nous allons d'abord supposer le pompage optique totalement efficace. Dans ces conditions le fond vaut: $\alpha\{\frac{1}{2}(T_+ + T_-)\}$ où α est un facteur de proportionnalité; les signaux "négatifs" correspondant aux transitions hyperfines partant du niveau $F = 2$ devraient valoir:

$$\alpha\{T_- - \frac{1}{2}(T_+ + T_-)\} = -\alpha\{\frac{1}{2}(T_+ - T_-)\}.$$

Les signaux "positifs" correspondant aux transitions hyperfines partant du niveau $F = 1$ devraient valoir:

$$\alpha\{\frac{1}{2}(4T_+ + T_-) - \frac{1}{2}(T_+ + T_-)\} = \alpha\frac{3}{8}[4T_+ - T_-].$$

On constate sur la fig. 4 que les signes prévus pour les signaux sont exacts, que les intensités des signaux "positifs" correspondant aux raies ($F = 1 \rightarrow F' = 1$; $F = 1 \rightarrow F' = 2$) sont effectivement égales et que

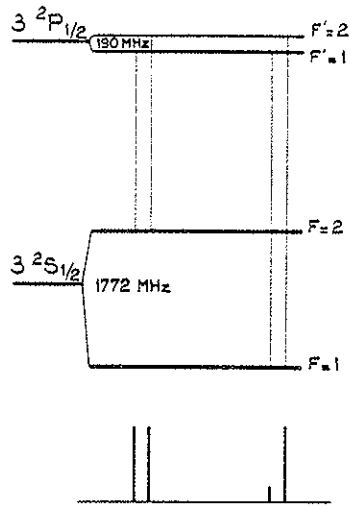


Fig. 3. Structure hyperfine de la raie D₁ de ²³Na.

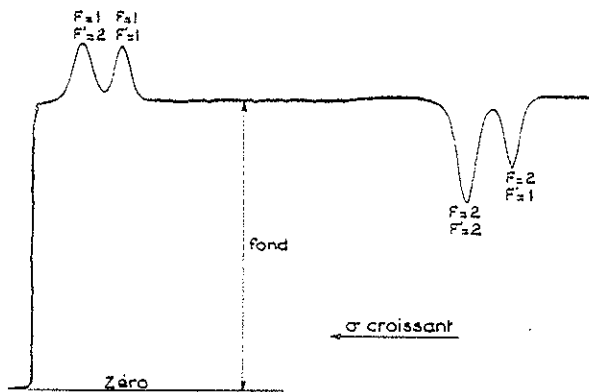


Fig. 4. Enregistrement de la structure hyperfine de la raie D₁ de ²³Na.

l'intensité du signal "négatif" correspondant à la raie $F = 2 \rightarrow F' = 2$ est égale à peu près aux $\frac{2}{3}$ des signaux précédents. Par contre l'autre signal négatif est plus faible. On est donc conduit à penser que pour cette transition le pompage optique n'est pas totalement efficace. Nous avons calculé les vitesses de pompage pour les différents niveaux hyperfins à intensité lumineuse constante. Comme l'émission induite est un facteur défavorable pour le pompage optique on a toujours intérêt à maintenir le paramètre de saturation $x = B\rho/A$ faible, en augmentant éventuellement la zone l'interaction. Nous avons pris $x \ll 1$, pour ce

calcul, et nous sommes arrivés alors à des expressions de la forme $\exp(-kAx t)$:

$$\begin{cases} F = 1 \rightarrow F' = 1 & N_{F=1} = \frac{3}{8}N_0 \exp(-\frac{5}{12}Ax t_0), \\ F = 1 \rightarrow F' = 2 & N_{F=1} = \frac{3}{8}N_0 \exp(-\frac{7}{12}Ax t_0); \end{cases}$$

$$\begin{cases} F = 2 \rightarrow F' = 1 & N_{F=2} = \frac{5}{8}N_0 \exp(-\frac{1}{12}Ax t_0), \\ F = 2 \rightarrow F' = 2 & N_{F=2} = \frac{5}{8}N_0 \exp(-\frac{1}{4}Ax t_0); \end{cases}$$

N_0 étant le nombre d'atomes sur le niveau de départ de la transition, à l'instant initial. t_0 : temps d'interaction, dans notre cas $t_0 \approx 5 \times 10^{-6}$ sec. On voit que, effectivement, c'est pour la transition $F = 2 \rightarrow F' = 1$ que le coefficient k est le plus faible, donc le pompage relativement moins efficace.

Du rapport des intensités observées des signaux $F = 2 \rightarrow F' = 1$ et $F = 2 \rightarrow F' = 2$ nous avons tiré une estimation du nombre $Ax t_0$ qui nous a conduit à une valeur de x de l'ordre de 0,1 ce qui est tout à fait compatible avec la densité de rayonnement utilisée.

Le rapport signal/fond permet de calculer la quantité

$$\frac{T_+ - T_-}{T_+ + T_-} \approx 35\%,$$

inférieure à la valeur théorique prévue pour le cas idéal. L'aimant hexapolaire qui a été utilisé pour cette expérience nous a été prêté par Audouin du Laboratoire de l'Horloge Atomique. Les paramètres géométriques de cet aimant ont été optimisés pour des jets d'hydrogène et ne sont pas, par conséquent, les mieux adaptés pour un jet de sodium. Un calcul analogue à celui donné dans la réf. [10] nous a cependant conduit à une valeur de 70% mais il supposait une source ponctuelle centrée sur l'axe de l'aimant hexapolaire. D'autre part la lumière laser n'est efficace que pour certaines classes de vitesses des atomes du jet: en effet la largeur de la bande de fréquence émise, inférieure à 20 Mc/s est plus étroite que la bande de fréquence d'absorption du jet, de l'ordre de 30 Mc/s, avec la collimation utilisée.

La transmission calculée de l'appareil utilisé est de 1×10^{-5} , cette valeur est compatible avec la valeur observée, assez imprécise, due à la difficulté de

mesurer exactement la température de la vapeur saturante dans le four.

Nous pensons qu'il n'y a pas de difficulté sérieuse à obtenir un rapport signal/fond $\approx 50\%$ et une transmission de 5×10^{-5} avec un aimant hexapolaire mieux adapté au problème. Dans ces conditions le rapport signal/bruit $= \frac{1}{2}\sqrt{N}$, N étant le nombre d'atomes constituant le fond. On voit que pour obtenir un rapport signal/bruit $= 2$, il faudrait avoir N de l'ordre de 10 atomes par durée de vie ce qui correspond à 2×10^5 atomes issus de la source. Cette estimation donne seulement un ordre de grandeur, car dans la pratique il faut tenir compte du bruit du détecteur.

En conclusion, nous pensons que cette méthode conduit à des signaux très utilisables pour des jets très peu denses. Par contre l'élargissement des courbes par effet de saturation du pompage optique ainsi que la faible collimation conduisent à une résolution plus faible que d'autres méthodes de jets atomiques.

Remerciements

Nous remercions Monsieur le Professeur Audoin

d'avoir bien voulu nous prêter un aimant hexapolaire, ainsi que Monsieur Baronnet pour son aide technique très efficace.

Références

- [1] H.T. Duong, P. Jacquinet, S. Liberman, J.-L. Picqué, J. Pinard et J.-L. Vialle, *Opt. Commun.* 7 (1973) 371.
- [2] P. Jacquinet, S. Liberman, J.-L. Picqué et J. Pinard, *Opt. Commun.* 8 (1973) 165.
- [3] H.T. Duong, P. Jacquinet, S. Liberman, J. Pinard et J.-L. Vialle, *C.R. Acad. Sc. Paris* 276B (1973) 909.
- [4] I.I. Rabi, S. Millman et P. Kusch, *Phys. Rev.* 55 (1939) 526.
- [5] H. Bucka, *Z. Physik* 191 (1966) 199.
- [6] D. Zimmermann, *Z. Physik* 224 (1969) 403.
- [7] P. Cerez, M. Arditti et A. Kastler, *C.R. Acad. Sc. Paris* 267B (1968) 282.
- [8] S. Liberman et J. Pinard, *Appl. Phys. Lett.* 24 (1974) 142.
- [9] C. Audouin, M. Desaintfuscien et J.P. Schermann, *Nucl. Instr. Methods* 69 (1969) 1.
- [10] V.W. Hughes, R.L. Long, Jr., M.S. Lubell, M. Posner et W. Raith, *Phys. Rev.* 5A (1972) 195.

ANNEXE V

High-Resolution Laser Spectroscopy of the D Lines of On-Line Produced $^{21, 22, 24, 25}$ Na Using a New High-Sensitivity Method of Detection of Optical Resonances

G. Huber,* C. Thibault, and R. Klapisch

*Laboratoire René Bernas du Centre de Spectrométrie Nucléaire et de Spectrométrie de Masse,
91406 Orsay, France*

and

H. T. Duong, J. L. Vialle, J. Pinard, P. Juncar,† and P. Jacquinet

Laboratoire Aimé Cotton, Centre National de la Recherche Scientifique II, 91405 Orsay, France
(Received 27 February 1975)

A polyisotopic sodium beam of $^{21-25}\text{Na}$, produced by spallation of Al, was illuminated with a tunable cw dye laser. The atomic beam, analyzed by a six-pole magnet is then ionized and detected by use of a mass spectrometer. The results are as follows: isotopic shifts relative to ^{23}Na , $^{21}\text{Na} = -53.5$ mK, $^{22}\text{Na} = -25.3$ mK, $^{24}\text{Na} = +23.1$ mK, $^{25}\text{Na} = +44.6$ mK; $\mu_I(^{25}\text{Na}) = +3.685(22)\mu_N$; b factor in the $P_{3/2}$ state of $^{25}\text{Na} = -16(8)$ MHz.

Half-lives,¹ masses,² and other properties³ of short-lived sodium isotopes have recently been determined by use of a mass spectrometer on-line with an accelerator. As an extension of this work, we wished to determine other static properties of these nuclei. We have thus attempted to measure the hyperfine structure and isotope shift (IS) of the atomic D lines of sodium isotopes. The purpose of this paper is to present the first results that have been obtained with a newly developed method that could eventually extend our knowledge on the shape and magnetic properties of nuclei far from stability.

The hfs of the ground state of $^{20-24}\text{Na}$ has already been measured by different methods⁴; recently a determination of the absolute value of the magnetic moment of ^{25}Na has been published.⁵ However the hfs of the excited $3P$ states are unknown for the unstable isotopes and there are no data available for isotope shifts.

This type of measurement on a series of isotopes can give interesting indications on nuclear shapes. The observation of irregularities of the hfs and IS of short-lived Hg isotopes⁶ has been especially fruitful in that context. In the case of sodium, however, the same method as in Ref. 6 would fail because of the Doppler broadening, and it is necessary to use one of the new methods of Doppler-free high-resolution spectroscopy.⁷⁻⁹

The special requirements of our on-line experiment have in fact led to the development of a variant of one⁷ of these methods of detection of optical transitions in an atomic beam.¹⁰ In essence this method rests upon the magnetic detection of the optical pumping which occurs when a laser beam is tuned to the frequency of one of the hyperfine components of the D lines. This optical pumping changes the population distribution between the states $m_J = \pm \frac{1}{2}$ of the atoms of an atomic beam, and the change is detected by means of a magnetic filter consisting of a six-pole magnet which focuses the atoms with $m_J = +\frac{1}{2}$ and defocuses the atoms with $m_J = -\frac{1}{2}$.

In the actual experiment, the isotopes of sodium are produced in the spallation of aluminum by 150-MeV protons from the Orsay synchrocyclotron. Since this nuclear reaction results in a mixture of the different isotopes and their optical resonances might overlap, it is necessary to separate them on-line using a mass spectrometer.

A highly efficient target has been developed in order to have the best sodium-isotope production. We have used a molten-metal target in a graphite container. It was loaded with 10 g of high-purity aluminum and heated by alternating current up to 900°C. The yield of the spallation reaction $^{27}\text{Al}(p, 3p\pi n)\text{Na}$ with 150-MeV protons

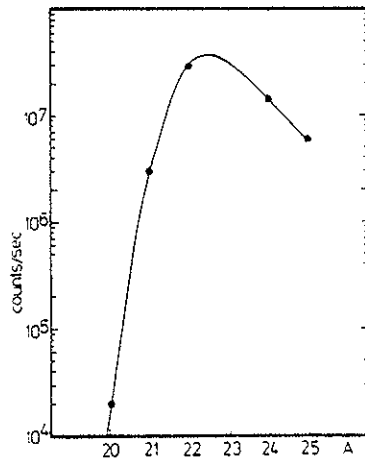


FIG. 1. Isotopic yield of the spallation reaction $^{27}\text{Al}(p, 3pn)^{25-x}\text{Na}$ with 150-MeV protons.

was studied by directly connecting the target to the thermoionic source of the mass spectrometer. The counting rate after mass separation is shown in Fig. 1. The diffusion delay time in the molten metal is strongly temperature dependent and decreases from 1 min to 10 sec between 850 and 900°C.

This target is used in the present experiment as the oven of the atomic beam. A schematic view is given in Fig. 2. The collimation of the beam is defined by a nitrogen-cooled diaphragm to 30/1. The sodium atoms effusing from the oven interact with the laser beam before passing the six-pole magnet. The outgoing atoms impinge on a hot rhenium surface acting as the ion source of a small magnetic mass spectrometer. Mass-separated ions are counted after the exit slit with an electron multiplier. This device detects equally well atoms of stable or short-lived isotopes.

The laser is a single-mode tunable dye laser of high stability which has been used in other experiments.¹¹ A new frequency control and scanning system can provide a frequency change by increments of 7.5 MHz (0.25 mK) initiated by pulses from a pilot clock: This system, called "sigma-meter" will be described elsewhere.¹² A small part of the laser light is used to observe the fluorescence signal from an auxiliary ^{23}Na atomic beam which serves as a reference.

For each isotope, the hfs of its D_1 line is recorded in a single scan, together with the corresponding line of ^{23}Na . The duration of the scan is about 10 min. The signals are directly monitored on a two-channel chart recorder and fed

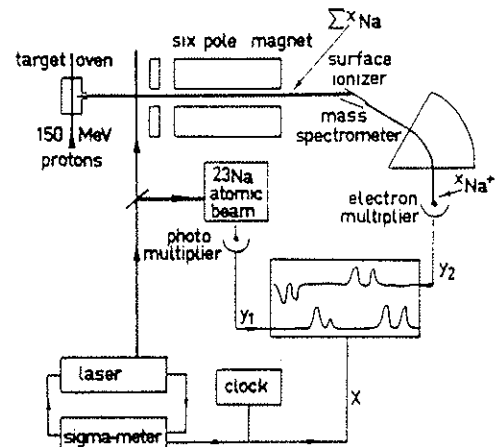


FIG. 2. Schematic view of the experiment.

simultaneously, by a specially built routing device, into the different subgroups of a multichannel analyzer.

The total beam leaving the oven contains up to 10^8 atoms/sec of ^{25}Na . Because of the different losses, the corresponding counting rate at the detector is then 3000/sec. The background of the electron multiplier due to nuclear reaction is only 30–50 counts/sec. It should be noted however that tailing of ^{23}Na ions at mass 22 results in up to 1000 counts/sec. This could certainly be improved in the future by adding an electrostatic deviation after the magnetic mass spectrometer.

Figure 3 shows the spectra obtained. Our results on the hfs of the $^2S_{1/2}$ ground state are in agreement with the known values obtained by ra-

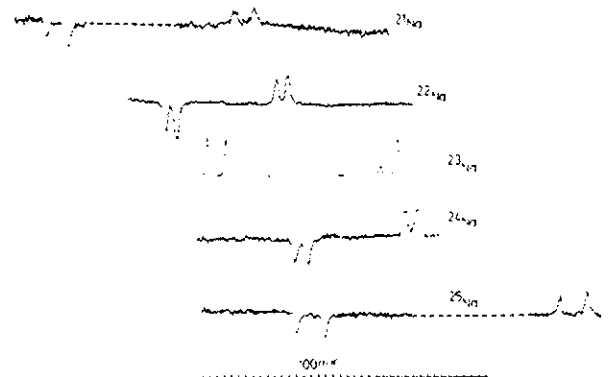


FIG. 3. hfs and IS of the D_1 lines of $^{21-25}\text{Na}$ isotopes. These lines, measured individually relative to ^{23}Na , are here shown together on a common wave-number scale.

TABLE I. Relative isotopic shifts of $^{21-25}\text{Na}$.

| Isotopes | Isotopic shift (mK) |
|---------------------------------|------------------------|
| $^{21}\text{Na}-^{23}\text{Na}$ | - 53.5(2) |
| $^{22}\text{Na}-^{23}\text{Na}$ | - 25.3(2) |
| $^{24}\text{Na}-^{23}\text{Na}$ | + 23.1(4) |
| $^{25}\text{Na}-^{23}\text{Na}$ | + 44.6(2) |

diofrequency techniques for $^{24,22,24}\text{Na}$ within the limits of the statistical uncertainties of the signal and accidental irregularities of the scanning by the sigma-meter. Our value for the magnetic moment of ^{25}Na is $\mu_I = + 3.685(22)\mu_N$. The value $|\mu_I| = 3.710(70)\mu_N$ given by Deimling *et al.*⁵ is in agreement with our number.

The measured values of the isotope shifts are given in Table I. It appears that the measured values follow the law of the normal plus specific mass effect within the experimental errors. This type of experiment can also lead to a determination of the nuclear electric quadrupole moment if the hyperfine structure of the $^3P_{3/2}$ state can be measured with a good precision. For that purpose, we have also observed the four ($F = 2, 3 \rightarrow F = 2, 3$) transitions in the D_2 line of ^{25}Na , which were only partially resolved with the present collimation of the atomic beam. From this measurement we have estimated the b factor for the $^3P_{3/2}$ state to be $b = -16(8)$ MHz. An experiment with a better collimation for the measurement of b is in progress.

The authors would like to thank their colleagues of the Institut de Physique Nucléaire whose support and help made it possible to carry out this experiment at the Orsay synchrocyclotron. It is a pleasure to acknowledge the able technical assistance of R. Baronnet (atomic-beam apparatus), R. Leroux (electronics of the sigma-meter), B. Rosenbaum (data-acquisition system), J. F. Kepinski (assembly and testing of the apparatus),

and M. Jacotin (electronics of the mass spectrometer).

*On leave from University of Mainz, Mainz, Germany, and Gesellschaft für Schwerionenforschung, Darmstadt, W. Germany.

†Present address: Institut für Angewandte Physik der Universität Heidelberg, Heidelberg, Germany.

¹R. Klapisch, C. Thibault, A. M. Poskanzer, R. Prieels, C. Rigaud, and E. Roeckl, Phys. Rev. Lett. **29**, 1254 (1972).

²R. Klapisch, R. Prieels, C. Thibault, A. M. Poskanzer, C. Rigaud, and E. Roeckl, Phys. Rev. Lett. **31**, 118 (1973).

³E. Roeckl, P. F. Dittner, C. Détraz, R. Klapisch, C. Thibault, and C. Rigaud, Phys. Rev. C **10**, 1181 (1974).

⁴G. H. Fuller and V. W. Cohen, Nucl. Data, Sect. A **5**, 433 (1969); J. Bonn, E. W. Otten, Ch. Von Platen, W. Linder, H. Müller, and H. Schweickert, in CERN Report No. CERN 70-30, 1970 (unpublished), p. 383, Proceedings of the International Conference on the Properties of Nuclei far from the Region of Beta-Stability, Leysin, Switzerland, 1970.

⁵M. Deimling, J. Dietrich, R. Neugart, and H. Schweickert, in *Proceedings of the Fourth International Conference on Atomic Physics, Heidelberg, Germany, 1974. Abstracts of Contributed Papers*, edited by J. Kowalski and H. G. Weber (Heidelberg Univ. Press, Heidelberg, Germany, 1974), p. 207.

⁶J. Bonn, G. Huber, H. J. Kluge, U. Köpf, L. Kugler, and E. W. Otten, Phys. Lett. **36B**, 41 (1971), and **38B**, 308 (1972).

⁷H. T. Duong, P. Jacquinet, S. Liberman, J.-L. Picqué, J. Pinard, and J.-L. Vialle, Opt. Commun. **1**, 371 (1973).

⁸P. Jacquinet, S. Liberman, J.-L. Picqué, and J. Pinard, Opt. Commun. **8**, 163 (1973).

⁹H. T. Duong, P. Jacquinet, S. Liberman, J. Pinard, and J.-L. Vialle, C. R. Acad. Sci., Ser. B **276**, 909 (1973).

¹⁰H. T. Duong and J.-L. Vialle, Opt. Commun. **12**, 71 (1974).

¹¹S. Liberman and J. Pinard, Appl. Phys. Lett. **24**, 142 (1974).

¹²J. Pinard and P. Juncar, to be published.

ANNEXE VI

SPECTROSCOPIE ATOMIQUE. — *Détermination par spectroscopie laser des moments quadrupolaires de noyaux radioactifs de sodium.* Note (*) de MM. Gerhard Huber, Robert Klapisch, M^{me} Catherine Thibault, MM. Tuan H. Duong, Patrick Juncar, Sylvain Liberman, Jacques Pinard, Jean-Louis Vialle et Pierre Jacquinet, Membre de l'Académie.

A la suite d'une première expérience réalisée sur les raies D₁ des isotopes instables 21, 22, 24 et 25 du sodium, une nouvelle expérience en lumière circulaire a permis d'obtenir la structure hyperfine des raies D₂ de ²³Na et ²¹Na. Comme dans la première expérience les transitions optiques étaient décelées par filtrage magnétique d'un jet atomique au moyen d'un aimant hexapolaire. On a mesuré (en barns) :

$$Q(^{23}\text{Na}) = 0,23 \pm 0,08 \quad \text{et} \quad Q(^{21}\text{Na}) = -0,060 \pm 0,075.$$

L'intérêt que présente l'étude systématique des séries de noyaux, isotopes d'un même élément, éventuellement assez loin de la vallée de la stabilité [(¹), (²), (³)], joint aux nouvelles possibilités expérimentales de spectroscopie à très haute résolution au moyen de lasers accordables (⁴), avait conduit à la réalisation d'une première expérience sur les isotopes de nombre de masse 21 à 25 du sodium, produits en très petites quantités en ligne derrière un accélérateur de protons (⁵). Dans cette première expérience, dont nous rappellerons le principe brièvement, tous les isotopes étudiés sont produits simultanément par réactions de spallation provoquées par bombardement d'une cible d'aluminium fondu avec des protons de 150 MeV. Les atomes de sodium dans leur état fondamental traversent, sous la forme d'un jet atomique, l'entrefer d'un aimant hexapolaire qui analyse leur état magnétique (⁶) : l'aimant focalise les atomes dont le moment magnétique effectif correspond à $m_j = +1/2$ et défocalise ceux qui correspondent à $m_j = -1/2$. A la sortie de ce système de filtrage magnétique les atomes sont ionisés, accélérés, séparés en masse par un secteur magnétique, puis comptés par un multiplicateur d'électrons. Avant de traverser l'aimant hexapolaire les atomes subissent une interaction avec la lumière d'un laser à colorant accordé à la fréquence de l'une des transitions hyperfines connectées au fondamental : ceci modifie les populations des niveaux hyperfins du fondamental, donc des sous-niveaux m_j , ce qui se traduit par un changement de l'intensité du signal recueilli après la séparation en masse (rappelons, d'une part, que $2F$ des $2F+1$ sous-niveaux Zeeman du niveau $F = I+1/2$ correspondent, en champ fort, à $m_j = +1/2$ et que les $2F'+1$ sous-niveaux de $F' = I-1/2$ correspondent à $m_j = -1/2$; d'autre part, que les atomes suivent adiabatiquement les énergies Zeeman en passant de la zone d'interaction avec la lumière, région de champ magnétique faible, à la zone de l'entrefer de l'aimant où règne un champ fort). En réglant le spectromètre de masse sur chacune des masses correspondantes, l'expérience avait pu être effectuée sur les raies D₁ (²S_{1/2} - ²P_{1/2}) de ces isotopes; elle avait déjà permis de mesurer tout à la fois les déplacements isotopiques et les moments magnétiques nucléaires de ces isotopes. Elle se révélait par contre insuffisamment précise pour permettre la détermination des moments quadrupolaires Q au moyen des raies D₂ (²S_{1/2} - ²P_{3/2}). En effet, une bonne détermination de Q nécessite la mesure du rapport des intervalles hyperfins

$$\frac{[(F = I + 3/2) - (F = I + 1/2)]}{[(F = I + 1/2) - (F = I - 1/2)]}.$$

Or le premier de ces intervalles ne peut pas être mesuré avec cette méthode. En effet, si l'on prend l'exemple de ^{23}Na dont le spin nucléaire vaut $I = 3/2$, le sous-niveau hyperfin de valeur de F la plus élevée de $^2\text{P}_{3/2}$, soit $F = 3$, n'est connecté optiquement qu'avec le sous-niveau hyperfin $F = 2$ du fondamental : pour cette transition, le pompage optique hyperfin employé ne modifie donc pas la population du niveau de départ $F = 2$. Nous avons

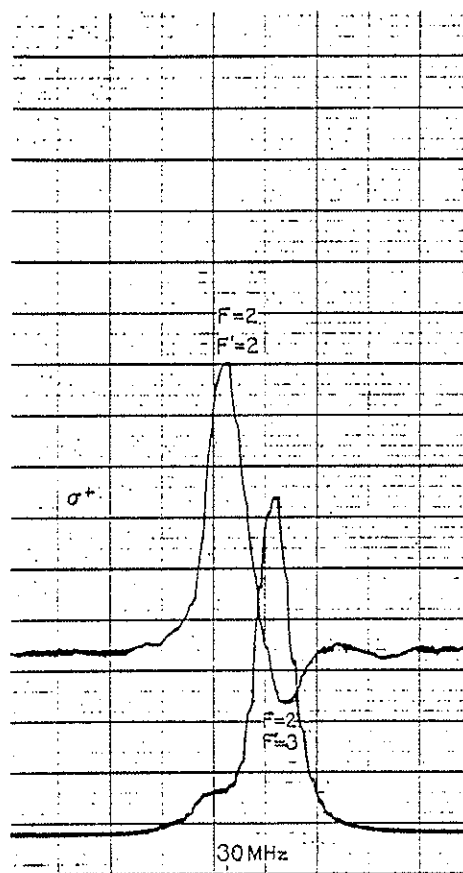


Fig. 1

alors effectué une deuxième série d'expériences utilisant cette fois un pompage optique en lumière polarisée en présence d'un petit champ magnétique directeur.

La région dans laquelle les atomes sont irradiés par le faisceau laser exciteur est le siège d'un petit champ magnétique, parallèle au faisceau laser (de l'ordre de 2 G), produit par un solénoïde, de sorte que les atomes ne peuvent voir que de la lumière σ_+ ou σ_- mais pas de lumière π . Le pompage optique des sous-niveaux Zeeman hyperfins du fondamental ainsi réalisé rend possible la détection de composantes invisibles dans la première série d'expériences. On donne à titre d'exemple les résonances obtenues avec ^{23}Na (isotope stable) en lumière σ_+ et σ_- (fig. 1). On peut rendre compte de l'intensité des signaux enregistrés en utilisant, puisqu'il s'agit de pompage optique, les équations d'évolution des populations des sous-niveaux Zeeman du fondamental, pour lesquels on suppose bien

évidemment l'absence de relaxation. Plus qualitativement on peut comprendre qu'un pompage σ_+ du fondamental dépeuple en définitive le sous-niveau Zeeman $m_F = -2$ correspondant à $m_I = -1/2$, au profit des sous-niveaux correspondant à $m_I = +1/2$, contribuant de ce fait à accroître le signal moyen, le contraire se produisant dans le cas d'un pompage σ_- . La méthode n'est correcte que si les différentes composantes Zeeman

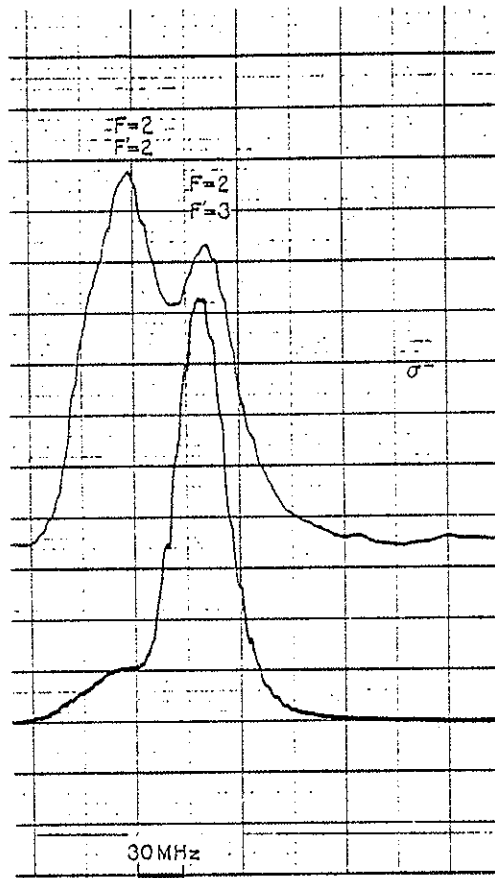


Fig. 1 (bis)

d'une même raie voient toutes le même champ laser. Il en est bien ainsi pour les faibles valeurs de champ magnétique utilisé, puisque la décomposition Zeeman est tout entière contenue dans la largeur naturelle de la raie. Cette condition, lorsqu'elle est réalisée, assure en outre que les déplacements et élargissements en fréquence dus au champ magnétique sont tout à fait négligeables à la précision de nos mesures.

Dans le cas de l'isotope stable, l'étude des intensités relatives des signaux enregistrés a montré qu'elles ne s'écartaient pas des valeurs calculées de plus de 10 %. Des enregistrements obtenus avec ^{23}Na on peut encore extraire une mesure du rapport des intervalles hyperfins de $^2\text{P}_{3/2}$: $[(F = 3) - (F = 2)] / [(F = 2) - (F = 1)]$, dont l'expression théorique vaut : $(3A + B) / (2A - B)$ où A et B représentent les constantes hyperfines magnétique

et électrique du niveau $^2P_{3/2}$. Le dépouillement de plusieurs enregistrements nous a donné la valeur $1,70 \pm 0,05$ de laquelle, connaissant A, on peut extraire $B = 2,8 \pm 0,6$ MHz [à comparer à la valeur la plus précise mesurée par ailleurs $B = 2,82 \pm 0,3$ MHz (⁷)].

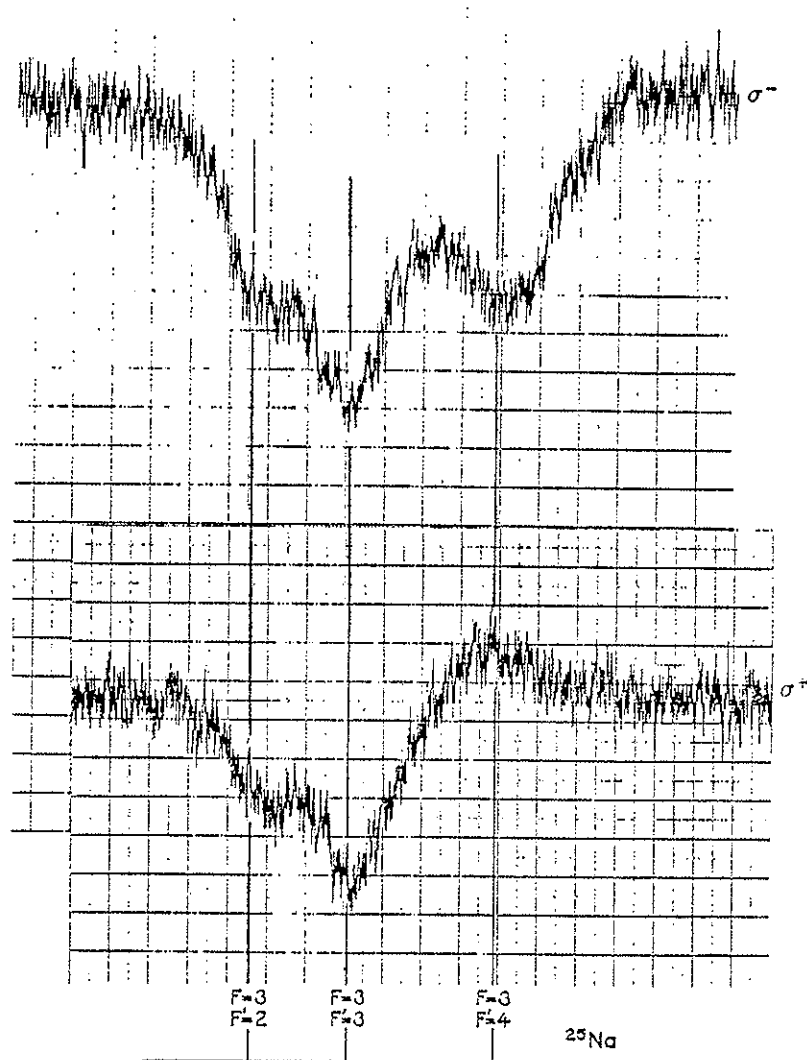


Fig. 2

L'isotope instable de nombre de masse 25 possède un spin nucléaire $I = 5/2$, et, comme de surcroît son moment magnétique est plus élevé que celui de l'isotope stable ^{23}Na , il présente une structure hyperfine plus grande pour laquelle on peut espérer une meilleure résolution des composantes. Les enregistrements obtenus montrent en effet une structure à trois composantes assez bien résolues (fig. 2), dont les intensités sont en bon accord avec celles que l'on peut estimer théoriquement. Pour cet isotope le rapport, défini plus haut, des intervalles hyperfins du niveau supérieur vaut $(4A + 0,8B)/(3A - 0,45B)$: les mesures nous ont donné $1,51 \pm 0,06$ soit pour B la valeur $B = 6,6 \pm 2$ MHz d'où l'on

tire finalement $Q(^{25}\text{Na}) = (0,23 \pm 0,08) 10^{-24} \text{ cm}^2$, après correction de Sternheimer⁽⁸⁾ (on a pris pour A la valeur 18,6 MHz; notons en outre que l'erreur indiquée correspond à 3 fois l'écart quadratique moyen sur les mesures).

Des enregistrements ont aussi été obtenus pour l'isotope de nombre de masse 21 dont le moment quadrupolaire n'avait pas encore été mesuré. Mais, malgré un bon rapport

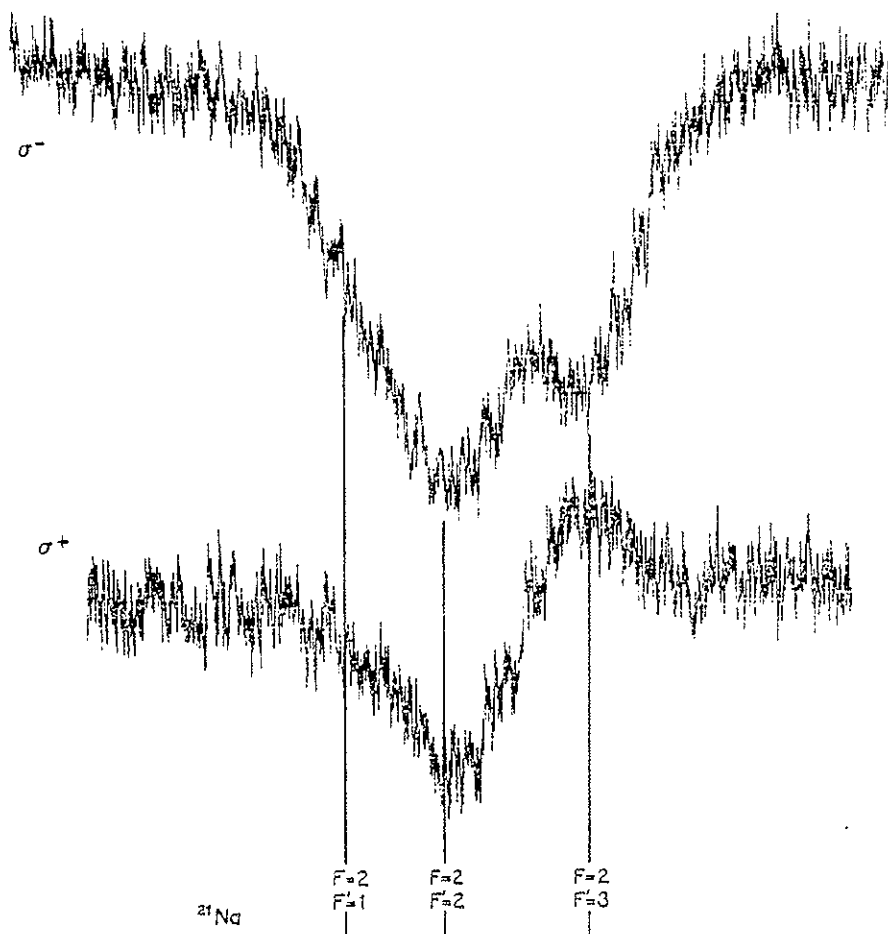


Fig. 3

signal sur bruit, la structure hyperfine enregistrée de cet isotope est trop serrée pour permettre la résolution de toutes les composantes (fig. 3), de sorte que la valeur obtenue pour le rapport des intervalles hyperfins de $^2P_{3/2}$ ne conduit au mieux qu'à une estimation assez grossière de B : $B = -1,6 \pm 2 \text{ MHz}$ correspondant à

$$Q(^{21}\text{Na}) = (-0,060 \pm 0,075) 10^{-24} \text{ cm}^2.$$

Les moments quadrupolaires observés confirment pour l'isotope ^{25}Na une déformation positive (allongée) du noyau, semblable à celle des noyaux voisins dans la couche (sd). En utilisant le facteur de projection du modèle du rotateur rigide

$$Q = [I(2I-1)/(I+1)(2I+3)] Q_0,$$

on trouve comme moment quadrupolaire intrinsèque $Q_0(^{25}\text{Na}) = (0,67 \pm 0,22) 10^{-24} \text{ cm}^2$ qui est en bon accord avec $Q_0 = 0,5 \cdot 10^{-24} \text{ cm}^2$ adopté généralement pour les noyaux voisins. Pour l'isotope ^{21}Na nos mesures sont assez imprécises mais ne sont pas incompatibles avec l'image d'une déformation positive. Une mesure précise serait particulièrement utile pour une comparaison avec le noyau « miroir » ^{21}Ne dont les propriétés sont très bien connues.

Ces expériences doivent être considérées comme préliminaires et servant à démontrer les possibilités de la méthode. Le travail se poursuit en vue d'augmenter la résolution et d'étendre les mesures à d'autres isotopes à durée de vie plus courte.

(*) Séance du 15 décembre 1975.

(¹) R. KLAPISCH, C. THIBAUT, A. M. POSKANZER, R. PRIEELS, C. RIGAUD et E. ROECKL, *Phys. Rev. Lett.*, 29, 1972, p. 1254.

(²) R. KLAPISCH, R. PRIEELS, C. THIBAUT, A. M. POSKANZER, C. RIGAUD et E. ROECKL, *Phys. Rev. Lett.*, 31, 1973, p. 118.

(³) E. ROECKL, P. F. DITTNER, C. DETRAZ, R. KLAPISCH, C. THIBAUT et C. RIGAUD, *Phys. Rev.*, C, 10, 1974, p. 1181.

(⁴) S. LIBERMAN et J. PINARD, *Appl. Phys. Lett.*, 24, 1974, p. 142.

(⁵) G. HUBER, C. THIBAUT, R. KLAPISCH, H. T. DUONG, J. L. VIALLE, J. PINARD, P. JUNCAR et P. JACQUINOT, *Phys. Rev. Lett.* 34, 1975, p. 1209.

(⁶) H. T. DUONG et J. L. VIALLE, *Opt. Commun.*, 12, 1974, p. 71.

(⁷) D. SCHÖNBERNER et D. ZIMMERMANN, *Z. Physik*, 216, 1968, p. 172.

(⁸) R. M. STERNHEIMER, *Phys. Rev.*, 105, 1957, p. 158.

G. H., R. K. et C. T. :

Laboratoire René-Bernas
du Centre de Spectrométrie nucléaire
et de Spectrométrie de Masse,
C.N.R.S. I.,
91406 Orsay;

H. T. D., P. J., P. J., S. L., J. P. et J.-L. V. :

Laboratoire Aimé-Cotton,
C.N.R.S. II,
91405, Orsay.

ANNEXE VII

Spins, magnetic moments, and isotope shifts of $^{21-31}\text{Na}$ by high resolution laser spectroscopy of the atomic D_1 line

G. Huber,[†] F. Touchard, S. Büttgenbach,^{**} C. Thibault, and R. Klapisch

Laboratoire René Bernas du Centre de Spectrométrie Nucléaire et de Spectrométrie de Masse, 91406 Orsay, France

H. T. Duong, S. Liberman, J. Pinard, J. L. Vialle, P. Juncar, and P. Jacquinet

Laboratoire Aimé Cotton, Centre National de la Recherche Scientifique II, 91405 Orsay, France

(Received 22 June 1978)

A polyisotopic sodium beam produced by reactions of 20 GeV protons in an uranium target, was illuminated with a tunable cw dye laser. The atomic beam is analyzed by a six-pole magnet, ionized, and detected after selection of one isotope by use of a mass spectrometer. From the optical D_1 resonance lines the hyperfine structure, magnetic moments, and isotope shifts of $^{21-31}\text{Na}$ have been determined. The nuclear spins of $^{26-30}\text{Na}$ have been measured by magnetic resonance. The results are discussed in terms of nuclear deformation. The analysis of isotope shifts shows the presence of an appreciable volume shift contribution.

[NUCLEAR STRUCTURE $^{26-30}\text{Na}$; measured J . $^{21-31}\text{Na}$; measured isotope shifts; deduced μ . Atomic beam laser spectroscopy and magnetic resonance.]

I. INTRODUCTION

The study of nuclear masses of exotic, neutron-rich sodium isotopes by on-line mass spectrometry had shown irregularities in the two neutron binding energy at $N=20$, which can be interpreted in terms of nuclear deformation.^{1,2} Within the framework of a more detailed investigation of these isotopes, new mass measurements,³ β^- , γ -spectroscopy measurements,⁴ and the present optical measurements have been performed at the proton synchrotron (P.S.) at CERN. Spins, magnetic moments, and isotope shifts of a long sequence of isotopes are of obvious interest to nuclear structure. At present full s - d shell calculations using different effective forces are available⁵ and also Hartree-Fock calculations using a Skyrme effective force have been published on these nuclei.² Both calculate binding energies and spins or deformation parameters, respectively. But, to our knowledge, no magnetic moment calculations on neutron-rich sodium isotopes have been reported.

In this detailed report on the optical investigations we present in Sec. II the principle of the experiment, in Sec. III the experimental set up, in Sec. IV the experimental procedure, and in Sec. V the results and their interpretation using the Nilsson model and the classical theory of isotope shift.

II. PRINCIPLE OF THE EXPERIMENT

The experimental set up uses a method of non-optical detection of optical resonances by means of magnetic deflection. This method has been developed and applied to $^{21-25}\text{Na}$ at Orsay.⁶⁻⁸ A target, placed inside a high temperature oven, is bom-

barded with a proton beam. The thermalized reaction products are emitted from the oven and form an atomic beam [Fig. 1(a)]. In the 1 region the sodium atoms may be excited by a light beam of a cw tunable single mode dye laser, in presence of a small magnetic field. At optical resonance with one of the well resolved hyperfine components of the D_1 line, hyperfine optical pumping occurs and changes the population distribution between the magnetic substates m_J . The atomic states pass adiabatically from the weak field region (interaction region) to the strong field region (inside the six-pole magnet), where I and J are decoupled. The atoms have then $m_J = +\frac{1}{2}$ or $m_J = -\frac{1}{2}$. The six-pole magnet (2 region) focuses the atoms with $m_J = +\frac{1}{2}$ and defocuses the atoms with $m_J = -\frac{1}{2}$. A signal proportional to the number of focused atoms of the studied sodium isotope is obtained by counting them with an electron multiplier after they have been ionized and passed through a mass spectrometer. The signals observed when scanning the laser frequency are shown in Fig. 1(b).

In this experiment, the light propagates along the direction of a small magnetic field H_0 perpendicular to the atomic beam. The field is small enough so that the total width of the Zeeman splitting of the line is smaller than 10 MHz, the natural line width. Π excitation is excluded. The calculation of the optical pumping for σ excitation is complicated because of coherence effects. The theory for the simple case of pure polarization (σ^- or σ^+) is given in Appendix A. A program has been written to compute the evolution of the populations using the optical pumping matrix from Appendix A. For $I = \frac{3}{2}$ (^{23}Na) the result as a function of $W \cdot t$, W being the light power density and

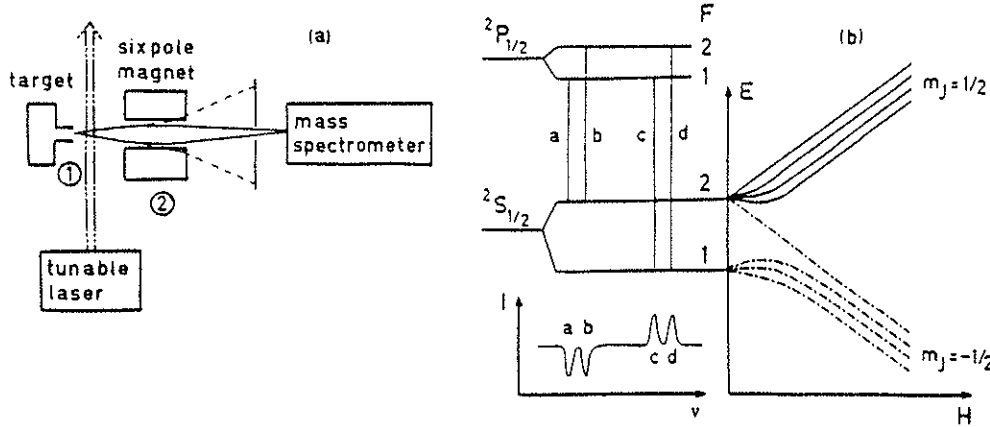


FIG. 1. (a) Scheme of the experiment. (b) Signals with the D_1 line for $I=3/2$.

t the interaction time, is shown in Fig. 2. From this figure it can be seen that there is a value of W for which the resonance signal approaches its asymptotic value. An increase in W would only broaden the resonance signal. The optimal value of W depends on the light polarization and on the hyperfine component, as well as on the nuclear spin. Therefore, ideally, W should be adjusted for each case. Since in practice a light power density range around the optimal value can be tolerated, we used, for reasons of time saving, the same value of a few mW/cm^2 which is in the tolerable range of all cases (see Fig. 2).

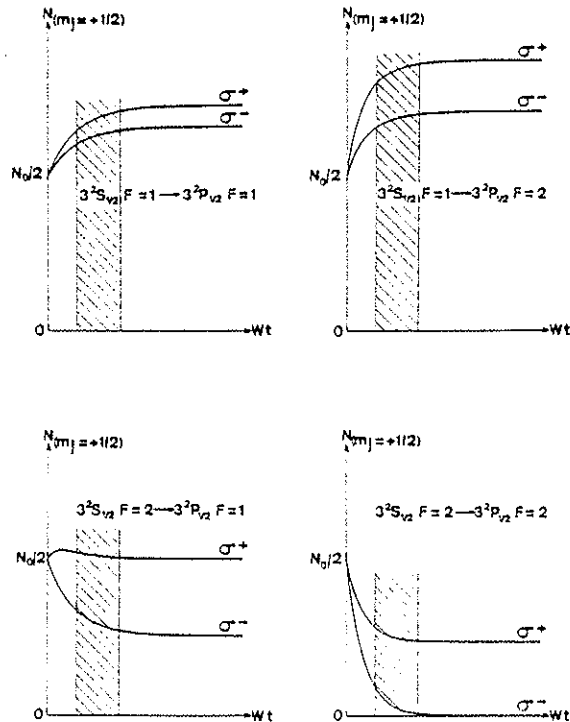


FIG. 2. Optical pumping with polarized light.

In order to determine the nuclear spin I we used the well known magnetic resonance method. The laser light is polarized σ^- and frequency locked to the hyperfine transition $3^2S_{1/2}, F=I+\frac{1}{2} \rightarrow 3^2P_{3/2}, F'=I+\frac{3}{2}$. Zeeman pumping occurs and the populations of the ground state sublevels are changed. The atoms involved in this transition are pumped in the Zeeman sublevel $m_F = -(I+\frac{1}{2})$ of the $F=I+\frac{1}{2}$ hyperfine ground state. Consequently all atoms are defocused by the six-pole magnet. A rf field perpendicular to the static field H_0 is applied to the optically pumped atoms. If the rf frequency is equal to the frequency of the transition between two adjacent Zeeman sublevels, the rf field tends to equalize the populations of all Zeeman sublevels since H_0 is weak enough for the Zeeman effect to be linear. In our case, the population of the $m_F = -(I+\frac{1}{2})$ sublevel is redistributed into Zeeman sublevels of the $F=I+\frac{1}{2}$ hyperfine ground state. The transferred atoms are focused by the six-pole magnet and the detected signal increases.

The transition frequency between two adjacent Zeeman sublevels in weak magnetic field H_0 is given by

$$\nu = g_F \mu_B H_0 / h$$

where

$$g_F = \frac{F(F+1) + J(J+1) - I(I+1)}{2F(F+1)} g_J$$

A term in g_I has been neglected in this expression, since $g_I \ll g_J$. In the case $J=\frac{1}{2}, g_J=2$ the transition frequency is

$$\nu = \frac{2\mu_B H_0}{(2I+1)h}$$

For a given rf frequency ν_{rf} and for each possible value of I there is a value of H_0 for which the

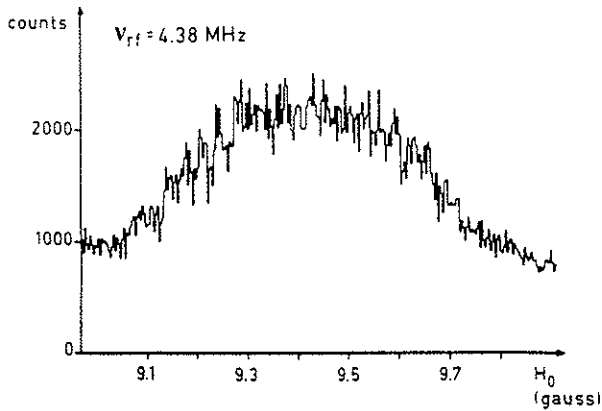


FIG. 3. Magnetic resonance signal for spin measurement of ^{25}Na .

transmitted beam intensity must increase

$$H_0 = \frac{\nu_{\text{rf}} h(2I + 1)}{2\mu_B}$$

The nuclear spin I is measured by checking which of these discrete values of H_0 produces an increase of the signal. The signal obtained on ^{25}Na by sweeping the magnetic field H_0 is shown in Fig. 3. The same Zeeman pumping effect occurs in the D_1 line, although the signal at rf resonance is smaller. Since the D_1 line was used for hyperfine structure and isotope shift measurements, it was more convenient to use the D_1 line also for the spin measurements.

III. APPARATUS

A. The uranium target and the atomic beam set up

It is now well known that neutron-rich light nuclei can be produced by bombarding an uranium target with high energy protons (see e.g. Refs. 9, 10). The target structure has already been described,¹⁰ and the cross sections for the production of sodium isotopes have been measured.^{10, 11} A thin layer of ^{238}U is deposited on graphite foils. The recoil fragments produced by the nuclear reactions are implanted into the graphite. There,

a chemical separation is achieved by the selective diffusion of the alkali atoms through the graphite as they come out of the target very quickly and form a thermal atomic beam.

Uranium dioxide powder from a suspension in amyl-acetate is sedimented ($\approx 15 \text{ mg/cm}^2$) on graphite foils $50 \mu\text{m}$ thick and $45 \times 5 \text{ mm}^2$ surface. 20 foils, separated by $100 \mu\text{m}$ graphite spacers, were glued into a stack with two $500 \mu\text{m}$ cover foils of graphite (Fig. 4). After sintering by heating up to 2000°C in vacuum, the stack was inserted in the tantalum oven. It was placed with the $4 \times 5 \text{ mm}^2$ face toward the proton beam. According to recoil energy measurements,⁹ about 60% of the produced sodium should be transferred to the graphite foils. The oven consists of a $300 \mu\text{m}$ thick tantalum foil rolled to form an 8 mm diameter and 50 mm long cylinder. Current connections are spotwelded at the top leads. In the middle of this tube a 3 mm diameter tube was spotwelded at right angle as an atomic beam exhaust. In order to increase the directivity of the emission of atoms, 3 collimating channels, 1 mm diameter and 20 mm long were inserted in the beam exhaust tubing. The exhaust tubing is provided with a current connection so that separate heating of the main part of the oven and the outlet tubing is possible. After heating to 2000°C , no change in the initial alignment of the oven, with respect to both the proton beam and the atomic beam axis was observed, due to the symmetrical and flexible construction of the current connections which support the oven. The purpose of the high temperature is to allow a fast diffusion of the sodium atoms through the graphite and the exhaust tubing. This allows us to study the short-lived sodium isotopes with $A \geq 28$ (see Sec. III E).

The region where the atoms interact with the laser light was magnetically shielded. The small static magnetic field H_0 was produced by a solenoid placed inside the shielding. The rf field was produced by a 10 turns solenoid centered on the atomic beam axis. Care has been taken to maintain a small field of the same direction than H_0 inside the magnetic shielding in order to avoid nonadiabatic transitions.

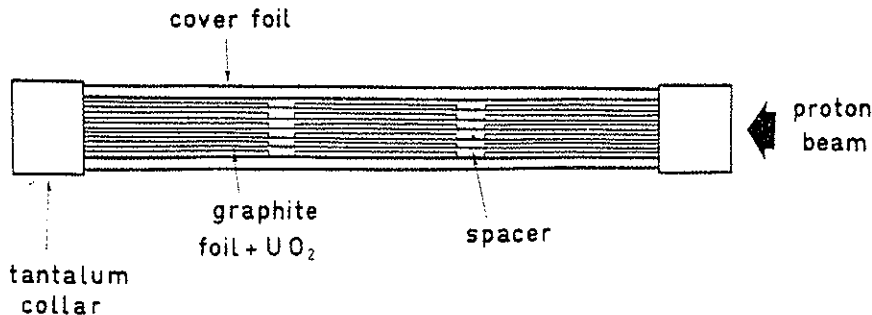


FIG. 4. Schematic view of the uranium graphite target.

B. The dye laser

Since contributions of the volume effect in the isotope shift were expected to be of the order of a few MHz, the frequency of the D_1 line had to be measured with an accuracy of about 10^{-8} . For this purpose we built a frequency controlled dye laser system. As in previous experiments^{7,8} this system comprised a "sigmometer"¹² which permits us both to stabilize the laser frequency and to scan it step by step with increments as small as 1 MHz.

The general scheme of the set up is shown in Fig. 5. A commercial dye laser system (CR 599) operated on one single mode whose frequency is locked using a reference Fabry-Perot cavity. The frequency jitter is less than 1 MHz; it is continuously tunable over a range of 30 GHz. But the stability is only 10 MHz per hour, so that a more stable reference is needed. For this purpose a small part of the laser light is sent into the sigmometer, which consists of a Michelson type interferometer with a fixed path difference of $\delta = 200$ cm, which is servocontrolled by use of a wavelength standard laser line. The common phase of the two normalized interference signals $\sin\phi$ and $\cos\phi$ ($\phi = 2\pi\sigma\delta$), provided by the sigmometer, can be visualized on a X-Y scope (Fig. 5), and by electronic comparison with a reference phase an error signal for the CR 599 frequency control system is generated. Thus the laser frequency, i.e., its wave number σ is stabilized on the sigmometer: the reference phase can be scanned in discrete steps of $\Delta\phi = 2\pi \times p/160$, where

p is a chosen integer. The minimum increment ($p=1$) is then $\Delta\sigma = 1/160.200 \text{ cm}^{-1}$ or $\Delta\nu = 0.9375$ MHz. In order to obtain a good optical stability of the sigmometer a Koster prism has been used for the multiple functions of beam splitter, compensator plate, mirror, and dephasing element, as one face of the prism has a reflective metal coating (see Fig. 5). The second mirror of the interferometer is mounted 1 m apart from the Koster prism by means of invar spacers and a piezoceramic stack.

A He-Ne laser locked on an iodine saturated absorption line is used to servocontrol the path difference δ . The He-Ne laser light path inside the interferometer is parallel to the dye laser light. The interference fringes generate an error signal in a servoloop acting on the piezoceramic stack of the second mirror. The stability of the whole system has been studied using the D_1 line of stable sodium (^{23}Na) whose hyperfine structure is known very accurately. This experiment is done by detecting the fluorescence signal from a well collimated atomic beam which is illuminated with the laser light. The results have shown a stability over several hours as well as a reproducibility of better than 1 MHz. This fluorescence signal of natural sodium was used as a reference frequency for the isotope shift measurements of $^{21-23}\text{Na}$.

To avoid first order Doppler frequency shifts of the resonance due to deviation from perfect perpendicularity between the atomic beam and the laser beam axis, the light was reflected back on itself on the radioactive atomic beam as well as on

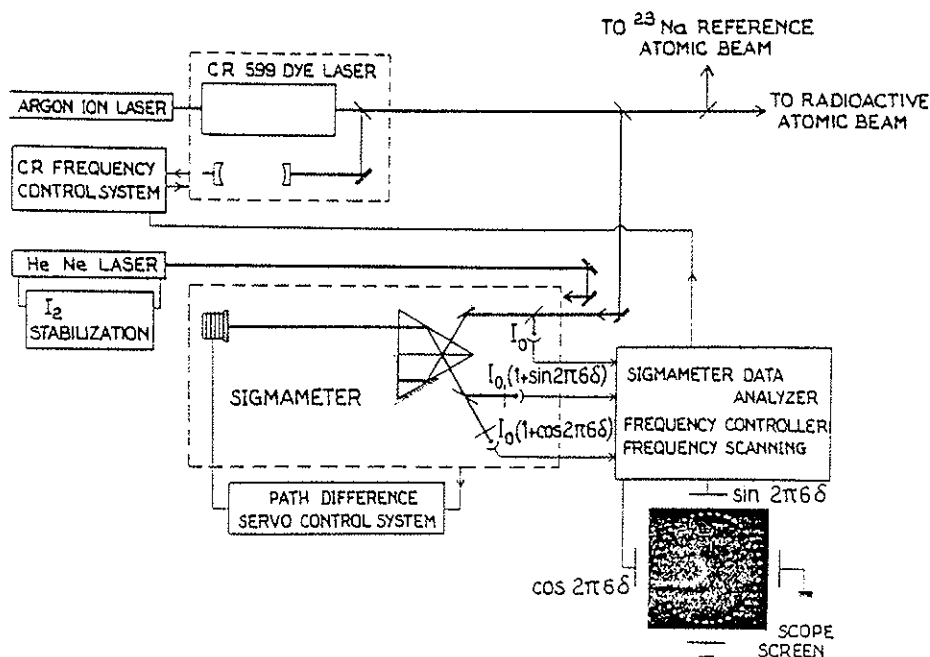


FIG. 5. General scheme of the laser set up.

the reference ^{23}Na beam. However, the retroreflection is not perfect in order to avoid light reflection into the dye laser. From the achieved angle between the two light beams we have found that a residual frequency shift of about ± 1 MHz was to be expected. In fact, the systematic error introduced by this residual shift in the mean value of the isotope shift measurements is less than 1 MHz, due to different settings of retroreflection.

C. The six-pole magnet

We used two commercial six-pole magnets in series as magnetic state selector, each with 9300 Gauss at the pole tips, 8.6 cm length and 0.32 cm gap diameter. Calculating the transmission as described in Appendix B, a program has been written to determine the optimal value for L , assuming that the sodium atoms emerging from the oven are thermalized at 2000 °K. We found with $L = 6$ cm the separation parameter s , defined in Appendix B, to be 80%, and the effective solid angle to be $4.5 \cdot 10^{-4}$ sr, about three times the solid angle defined by the magnet exit and the beam source. Taking into account the dimension of the oven aperture, the collimation of the beam is 40, leading to a width of the optical resonance of about 70 MHz. The observed width is somewhat larger (100 MHz) due to saturation of the optical pumping process.

D. The mass spectrometer

After the interaction with the laser beam and the state analysis through the six-pole magnet, the alkali isotopes are separated by a mass spectrometer. The required ionization—achieved by a rhenium surface ionizer—reinforces the chemical selection, since the alkali metals are well known for their low ionization potential when compared to neighboring elements. Since the ionization potential of sodium 5.14 eV is comparable to the work function of rhenium 5.1 eV only about 30% of the atoms can be ionized. To increase the ionization efficiency a small flow of oxygen was continuously directed on the ionizer. This led to the formation of rhenium oxide and thus brought the ionization efficiency close to unity.¹³ This was achieved by a controlled air leak near the ion source. The mass spectrometer has an inhomogeneous field (angle $\phi = 90^\circ$, field index $n = 0.23$, radius $R = 35$ cm) providing a resolving power which may be adjusted to values ≤ 650 . Its transmission has been measured using a chopped atomic beam of ^{23}Na . The ratio of the intensities before the ionizer (i.e., the source of the spectrometer) and at the detector placed at the end of the ion transport line is measured to be 50–75%, for a mass resolution $M/\Delta M$ of the order of 300.

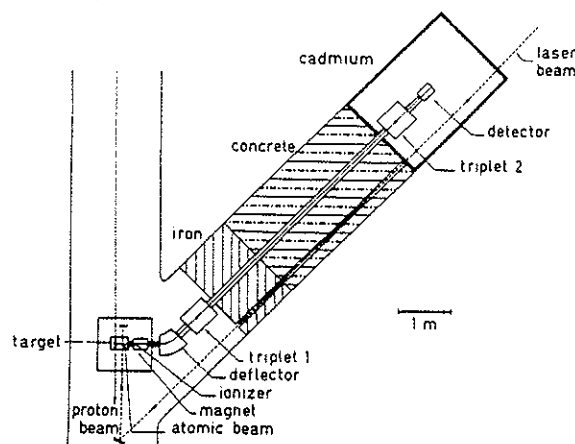


FIG. 6. Overall view of the experimental area.

The beam at the P.S. consists of very short (2.1 μs) pulses of 10^{12} – 10^{13} protons, separated by at least 2.4 s. Due to this high intensity, the level of radiation background is very high while its decay is exponential ($T_{1/2} \approx$ some ms). In order to be able to detect very short-lived isotopes with low counting rates (for ^{31}Na : $T_{1/2} = 15$ ms and about 3 counts/pulse), the mass selected ions had to be conducted to a detection area which was separated from the target area by a thick shielding (Fig. 6) giving an attenuation of 10^5 – 10^6 for the background. Furthermore, it was located in a cadmium shielded cage, the purpose of which was to absorb thermalized neutrons, so that the exponential decay was cut off.

E. Total efficiency of the system

From the total thickness of uranium in the target (≈ 3.4 g/cm²), the number of protons per pulse and the known cross sections (14 mb for ^{23}Na), the number of produced atoms can be calculated. For ^{23}Na one finds about 10^9 atoms per pulse while the observed number of ions is 10^4 . This corresponds to an overall efficiency of 10^{-5} , which is consistent with the value that one obtains using the different reducing factors discussed above and assuming that about 50% of the atoms are extracted from the graphite.

For the sodium isotopes with $A \geq 28$, which have half lives shorter than 60 ms, one has to take into account the delay time between the production of the nucleus and its detection. This delay is due to the diffusion time of the atoms from the graphite and to the ionization time in the mass spectrometer source. A typical time interval for collecting 50% of the ions is 200 ms. The loss due to this delay is about a factor of 7 for a half life of 20 ms (^{31}Na).

IV. EXPERIMENTAL PROCEDURE

Since the optical resonances appear as peaks on a fluctuating base signal, it seemed to be necessary to have a normalization procedure for the beam intensity. Two different normalization procedures have been performed: one with the proton beam intensity and another one with a sodium isotope of the atomic beam. Both normalizations were, however, only 10–20% reliable. The normalization on the proton beam, by measuring the beam intensity using an electrostatic pick up, is subject to error since the production of sodium isotopes depends also upon the focusing of the proton beam on the target oven. The normalization between two sodium isotopes during the same measuring sequence allowed a comparison of the counting rate of a short-lived isotope at the beginning of the diffusion curve with the counting rate of a longer-lived isotope ($^{25,26}\text{Na}$) at the end of its diffusion curve (Fig. 7). But the value of this normalization procedure is limited to about 10% accuracy since for the longer-lived isotopes, counts due to atoms produced during preceding proton pulses were also taken into account.

In practice, the measuring sequence was started by a synchronization pulse from the P.S. preceding the proton pulse by 20 ms. Two ms after the proton pulse, when the background of fast particles had disappeared, ions of the mass A were recorded during a period of 20–300 ms depending on the half life of the isotope. Then, the voltage of the mass spectrometer and the ion beam transport line were set for the longer-lived isotope A' and a measuring period of 1–2 s was started. The corresponding counting rates were stored in buffer counters together with the digitalized fluorescence signal of the ^{23}Na reference beam, the

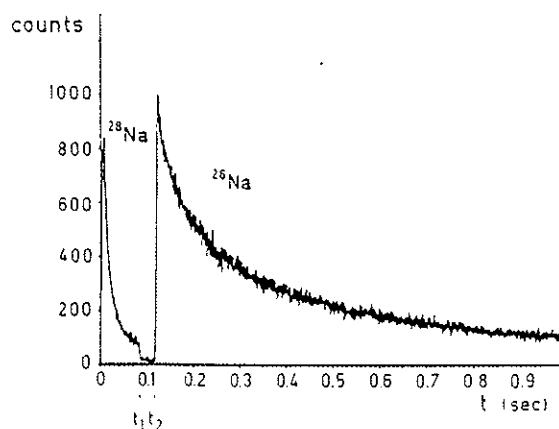


FIG. 7. Diffusion curves for 30 ms ^{28}Na and 1s ^{26}Na . At instant t_1 the mass spectrometer and the ion transport line were changed from mass 28 to mass 26. At instant t_2 counting of mass 26 was started.

signal of the proton beam intensity from the electrostatic pick up, and the scanning signal of the laser frequency. By a preset counter 1 to 100 cycles could be summed up in the buffer counters for a fixed frequency of the laser. In order to select the best timing for an optimum signal to noise ratio for the A signal, three channels with different counting times were used. The data of the buffer counters were transferred into memories, then read by a PDP 15 computer for analysis of the data and writing on magnetic tapes. Every spectrum started with the recording of at least two resonances of ^{23}Na from the reference atomic beam. Then the laser frequency was changed to allow the recording of the resonances of the sodium isotopes A and A' with an appropriate number of counting cycles per laser step.

V. RESULTS AND DISCUSSION

A. Spins

The spins determined by magnetic resonance for $^{26-30}\text{Na}$ are given in Table I. Because of lack of time, the spin for ^{31}Na has not been measured by the magnetic resonance method. The spin assignment for ^{31}Na is based on the value of the hyperfine structure and the isotope shift which indicate that $I = \frac{3}{2}$ is the most probable value. For prolate deformations the eleventh proton should occupy the $\Omega = \frac{3}{2}[211]$ Nilsson model orbit⁴⁴ leading to the ground state spin $I = \Omega = \frac{3}{2}$ for the odd isotopes. In the spherical limit the unpaired proton occupies the $d_{3/2}$ shell model orbit and the ground state spin should be $I = \frac{3}{2}$. From this we conclude that spin $\frac{3}{2}$ is a strong indication of an almost spherical nucleus ($^{25,27}\text{Na}$) and that spin $\frac{3}{2}$ indicates prolate deformation ($^{21,23,29,31}\text{Na}$). Assuming for the neutrons the normal filling order of the Nilsson model orbits for prolate deformations (see Fig. 8) the spins of the even isotopes can be explained, except for ^{30}Na . If we take only s - d orbits into account, spin 2 for ^{30}Na can be explained assuming a filled $\frac{3}{2}[202]$ orbit and the unpaired neutron being in the $\frac{1}{2}[200]$ orbit.

B. Magnetic moments

From the observed signals—typical examples are shown in Fig. 9—we first determined the center of gravity of each hyperfine component of the line using a computer program written for the PDP 15. The hyperfine splitting constants A for both the ground state and the excited state derived from this evaluation are given in Table I and are compared to other results when available.

The magnetic moments of $^{26-31}\text{Na}$ were calculated from the A factor of the $^2S_{1/2}$ ground state neglecting hyperfine anomaly effects

TABLE I. Spins, hyperfine structure, magnetic moments, and isotope shifts of $^{21-31}\text{Na}$. The quoted errors for results of the present work are one standard deviation.

| ^{A}Na | $T_{1/2}$ ^a | I | $A(^2S_{1/2})$ (MHz) | μ_I (μ_N) corrected | $A(^2P_{1/2})$ (MHz) | $IS^{23,x}$ (MHz) |
|------------------|------------------------|-----------------|---|-------------------------------|-----------------------------------|---------------------------------------|
| ^{21}Na | 22.5 s | $\frac{3}{2}^b$ | 953.7(2.0) 953.233(11) ^c | 2.38612(10) ^c | 102.6(1.3) | -1596.7(2.3) |
| ^{22}Na | 2.60 y | 3^b | 349.3(1.0) 348.75(1) ^d | 1.746(3) ^d | 37.5(1.0) 37.0(1) ^e | -756.9(1.9) -758.5(7) ^e |
| ^{23}Na | stable | $\frac{3}{2}^b$ | 885.8130644(5) ^f | 2.2175203(22) ^f | 94.25(15) ^e | |
| ^{24}Na | 15.02 h | 4^b | 253.2(2.7) 253.185018(23) ^g | 1.6902(5) ^g | 28.2(2.7) | 706.4(6.2) |
| ^{25}Na | 60.0 s | $\frac{5}{2}^b$ | 882.7(9) 882.8(1.0) ^h | 3.683(4) ^h | 94.5(5) | 1347.2(1.3) |
| ^{26}Na | 1.07 s | 3 | 569.4(3) | 2.951(2) | 61.0(3) | 1397.5(9) |
| ^{27}Na | 290 ms | $\frac{5}{2}$ | 933.6(1.1) | 3.895(5) | 100.2(1.1) | 2481.3(2.0) |
| ^{28}Na | 30.5 ms | 1 | 1453.4(2.9) | 2.426(3) | 156.0(2.7) | 2985.8(2.7) |
| ^{29}Na | 43 ms | $\frac{3}{2}$ | 978.3(3.0) | 2.449(8) | 104.4(3.0) | 3446.2(3.3) |
| ^{30}Na | 53 ms | 2 | 624.0(3.0) | 2.083(10) | 66.2(2.3) | 3883.5(6.0) |
| ^{31}Na | 17 ms | $\frac{3}{2}$ | 912(15) | 2.283(38) | | 2486(16) |

^a F. W. Walker, G. J. Kirouac, and F. M. Rourke, Chart of the Nuclides, 12th edition, revised to April 77, distributed by Educational Relations, General Electric Company, Schenectady, N. Y. 12345.

^b V. S. Shirley and C. M. Lederer, in *Hyperfine Interactions Studied in Nuclear Reactions and Decay* edited by E. Karlsson and R. Wäppling (Almqvist and Wiksell, Stockholm, 1975).

^c O. Ames, E. A. Phillips, and S. S. Glickstein, Phys. Rev. **137**, B1157 (1965).

^d L. Davis Jr., D. E. Nagle, and J. R. Zacharias, Phys. Rev. **76**, 1068 (1949).

^e K. Pescht, H. Gerhard, and E. Matthias, Z. Phys. **A281**, 199 (1977).

^f A. Beckmann, K. D. Böklen, and D. Elke, Z. Phys. **270**, 173 (1974).

^g Y. W. Chan, V. W. Cohen, and M. Lipsicas, Phys. Rev. **150**, 933 (1966); V. W. Cohen, Bull. Am. Phys. Soc. **18**, 727 (1973).

^h M. Deimling, R. Neugart, and H. Schweikert, Z. Phys. **A273**, 15 (1975).

$$\mu = \mu_{23} \frac{I}{I_{23}} \frac{A}{A_{23}}$$

The values used for the A factor and the magnetic moment of the reference isotope ^{23}Na are also quoted in Table I. As pointed out above, no theoretical values for the magnetic moments have been reported up to now. Therefore we attempted an interpretation of the magnetic moments in the framework of the Nilsson model¹⁴ using for odd isotopes

$$\mu_I = \frac{I}{I+1} \left[\frac{1}{2} (g_s - g_l) \times \sum_1 (\alpha_{1, \Omega-1/2}^2 - \alpha_{1, \Omega+1/2}^2) + g_l I + g_R \right]$$

and for even isotopes

$$\mu_I = \frac{I}{I+1} \left\{ \left[\Omega_p + \frac{1}{2} (g_s^p - g_l^p) \sum_1 (\alpha_{1, \Omega-1/2}^2 - \alpha_{1, \Omega+1/2}^2)^p \right] \pm \left[\frac{1}{2} g_s^n \sum_1 (\alpha_{1, \Omega-1/2}^2 - \alpha_{1, \Omega+1/2}^2)^n \right] + g_R \right\},$$

where the sign of the second term is the same as the sign of Ω_n appearing in the coupling rule $I = \Omega_p \pm \Omega_n$. In the calculation we used $g_s^p = 5.59$, $g_l^p = 1$, $g_s^n = -3.83$, and $g_R = Z/A$. The coefficients $\alpha_{1, \Omega \pm 1/2}$ were taken from Ref. 14. The results are plotted in Fig. 8. Except for $^{25,26,27}\text{Na}$ the magnetic moments are consistent with a positive deformation. For the proton state $\frac{5}{2} [202]$ (^{25}Na and ^{27}Na) the calculated moment is deformation independent. But in the case of ^{26}Na the moment indicates an almost spherical shape. It should, however, be noted that the magnetic moments are very sensitive to admixtures of other states to the ground state wave function, therefore the values of the corresponding deformation parameter η , indicated in Fig. 8, have only a limited significance.

C. Isotope shifts

Using the already determined hyperfine structure constants and the nuclear spins the determination of the center of gravity of the D_1 line is straightforward. The results with respect to ^{23}Na are given in the last column of Table I. The consis-

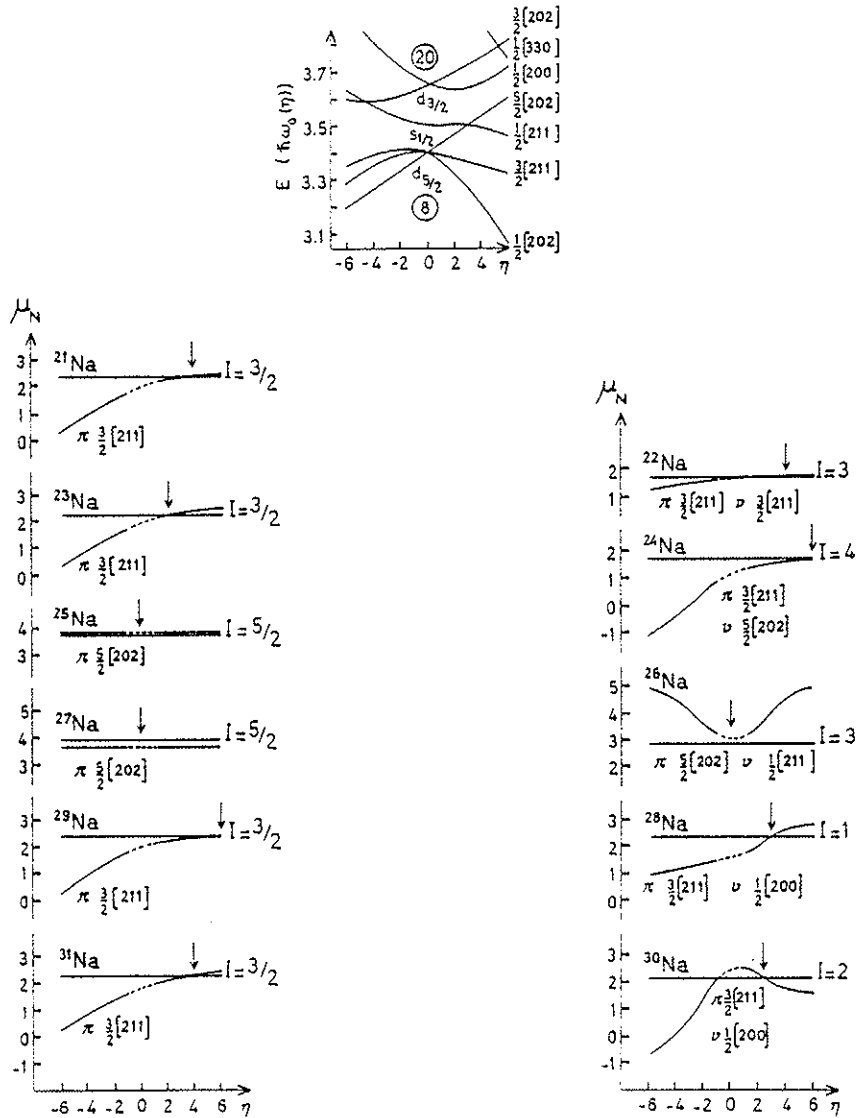
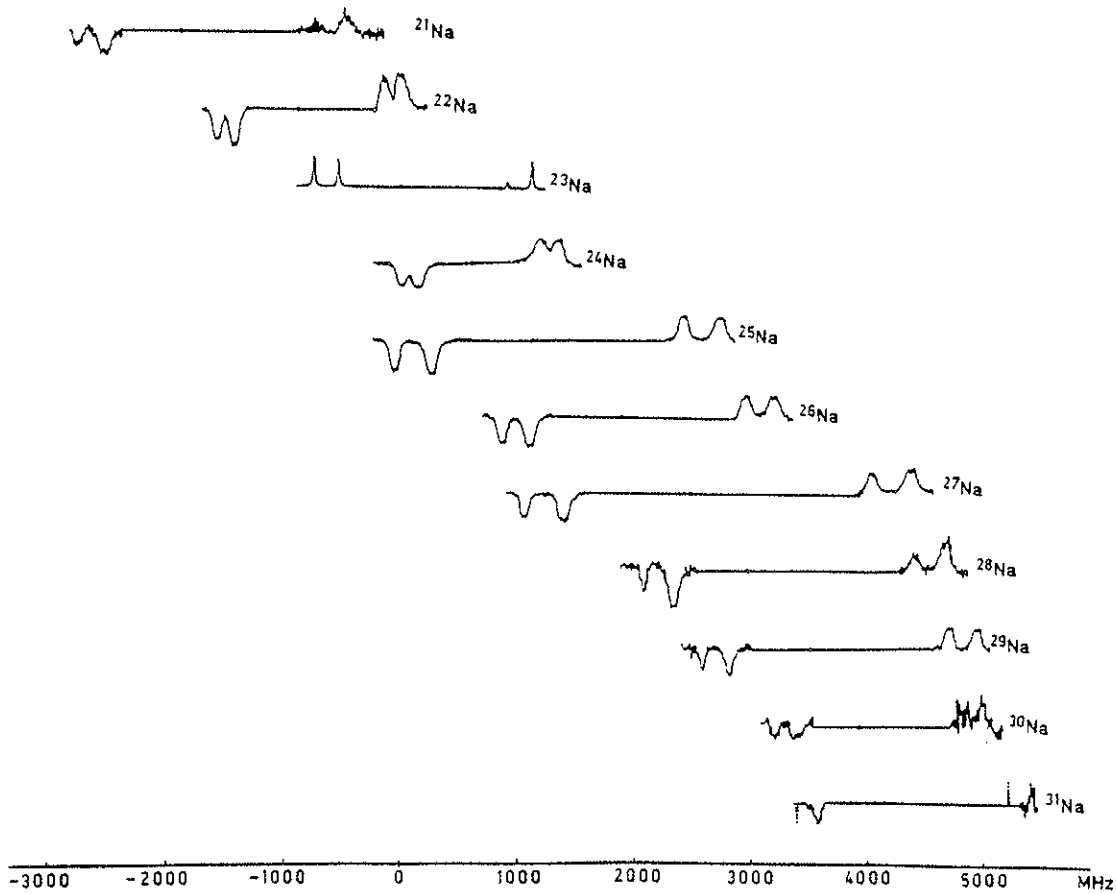


FIG. 8. Nilsson diagram for odd particle levels (Ref. 14), and nuclear magnetic moments of $^{21-31}\text{Na}$ as functions of the deformation parameter η . The experimental magnetic moments are plotted as straight lines parallel to the η axis, while the Nilsson graph is dashed near the region of zero deformation.

tency between the values of the isotope shift obtained from each of the four hyperfine components of the line was taken into account in the error evaluation. As seen on Table I, the resulting accuracy stands generally between 1 and 3 MHz, which may be considered as characteristic of the experimental set up. In some cases ($^{24,30,31}\text{Na}$) this accuracy was not obtained, owing to occasional difficulties. Because of its 15 h half life, ^{24}Na produces a rather high background when implanted in the first dynode of the electron multiplier, keeping from making further measurements on rarer isotopes. Thus only one measurement was performed on it, and further measurements were planned for the end of the run. But unfortunately

this experiment could not be done. In the cases of $^{20,31}\text{Na}$, the obtained accuracy is not so much due to the low counting rates (10 and 3 counts/pulse, respectively) related to the low production cross sections than to an accidental contamination by hydrocarbons. This means that a new set of measurements could improve the results for these three isotopes very much.

The measured isotope shift is the sum of two effects: the mass shift and the volume shift. The former is divided into a normal mass shift that can be calculated exactly, and a specific mass shift that cannot be calculated with reasonable precision. But both have the same dependence on the nuclear masses

FIG. 9. Hyperfine structure and isotope shifts of $^{21-31}\text{Na}$.

$$\delta\nu_{\text{mass}}^{AA'} = K \frac{M_{A'} - M_A}{M_{A'} M_A},$$

where M_A and $M_{A'}$ are the nuclear masses in atomic mass units and K is the unknown mass shift constant. The volume effect or change in the mean square radius of the nuclear charge distribution has no such mass dependence. For the D_1 line this effect is essentially sensitive for the s electron and may be written

$$\delta\nu_{\text{vol}}^{AA'} \approx F \delta\langle r^2 \rangle^{AA'},$$

where $\delta\langle r^2 \rangle^{AA'}$ is the change in the charge radius and

$$F = (\Pi a_0^3 \beta |\Psi_s(0)|^2 / Z) f(Z) = E f(Z).$$

$f(Z)$ which takes into account the relativistic corrections to E as well as the finite nuclear charge distribution can be calculated using a formula derived by Babushkin.¹⁵ $|\Psi_s(0)|^2$ is the charge density of the s electron at the nucleus, and a_0 is the Bohr radius. β is a screening factor due to the change in the wave functions of inner closed

shell electrons by the valence electron as it changes from $s_{1/2}$ to $p_{1/2}$. β has been determined by Bauche using the Hartree-Fock technique¹⁶: $\beta = 1.1 \pm 0.1$.

For the light elements the volume shift is not only very small compared to the mass shift but in many cases also negligibly small compared to the experimental errors. Up to now calcium has been the lightest element in which a volume effect has unambiguously been observed.¹⁷⁻¹⁹ Therefore, in the first step of the analysis we only looked for evidence of volume effect contributions to the observed isotope shifts. For this purpose the quantity $\delta\nu_{\text{obs}}^{23A} M_{23} M_A / (M_A - M_{23})$ has been plotted versus the mass number A (Fig. 10). If the observed isotope shifts were due to a pure mass effect the plotted quantity should be a constant. Therefore we conclude from Fig. 10 that there are volume shift contributions to the isotope shifts well outside the experimental error limits.

The volume shift can also be divided into two parts: the normal volume effect and a deformation effect. For a given change in neutron number the change in nuclear charge radius due to the normal volume effect should be almost constant along the

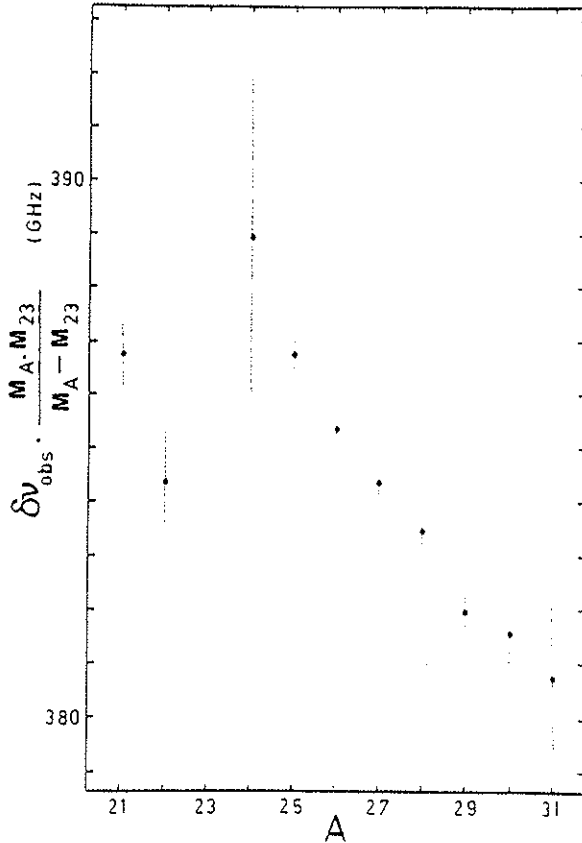


FIG. 10. Evidence of volume effect contributions to the isotope shift of sodium isotopes.

sequence of isotopes of one element, while the deformation effect is proportional to the nuclear deformation and therefore not regular. From Hartree-Fock calculations² as well as from the spin $\frac{5}{2}$ of ^{25}Na and ^{27}Na and from the magnetic moment of ^{26}Na , we tentatively make the assumption that for $^{26,27}\text{Na}$ the volume shift with respect to ^{25}Na can be described by the normal volume effect

$$\delta\nu_{\text{vol}}^{AA'} = F \times \zeta \times \delta\langle r^2 \rangle_{\text{std}}^{AA'}$$

where

$$\delta\langle r^2 \rangle_{\text{std}}^{AA'} = \frac{2}{3} r_0^2 \delta A / \bar{A}^{1/3}$$

and

$$\delta A = A' - A, \bar{A} = (A + A')/2.$$

$\delta\langle r^2 \rangle_{\text{std}}$ is the change of nuclear charge radii for uniformly charged sphere of standard radius $R = r_0 A^{1/3}$ ($r_0 = 1.2$ fm). $\zeta \leq 1$ is the so-called isotope shift "discrepancy" describing the fact that the radius of the nuclear charge distribution of a spherical nucleus increases less rapidly than $A^{1/3}$ when neutrons are added. This can be understood in terms of the dependence of the proton potential on the neutron excess.²⁰ Since for the present

case ζ is unknown, we performed the following calculations for $\zeta = 1$ and for $\zeta = 0.5$ which should be the upper and lower limit as it has been found for elements with $Z \geq 19$.^{21,22} $\zeta \approx 0.5$ is also consistent with Hartree-Fock calculations.²

From the hyperfine structure of the ground state of ^{23}Na we find $|\psi_s(0)|^2 = 0.75 a_0^{-3}$ and $E = 0.326$; $f(Z) = -199$ MHz/fm² is calculated from an expression given by Babushkin,¹⁵ and as the final result for the volume shift constant we obtain $F = -47$ MHz/fm². From the isotope shifts of $^{25-27}\text{Na}$ we then find the mass shift constant $K = 388$ GHz for $\zeta = 1$ and $K = 385$ GHz for $\zeta = 0.5$, and using the mass factors $(M_{A'} - M_A)/M_{A'} \cdot M_A$, the volume shift for the other isotopes was evaluated. The results are shown in Fig. 11. Both curves show the same general trend: deviations from the lines $\delta\langle r^2 \rangle_{\text{std}}$ and $\frac{1}{2}\delta\langle r^2 \rangle_{\text{std}}$ respectively, for the light isotopes $^{21-24}\text{Na}$ as well as for the heavy isotopes starting with ^{28}Na . It should be noted that these deviations would be true for any reasonable value of ζ . They can be interpreted as an effect of nuclear deformation. For the light isotopes such a deformation is already well documented (see, e.g., Refs. 20, 23).

Although this analysis of the isotope shifts is based on rough assumptions it should give the

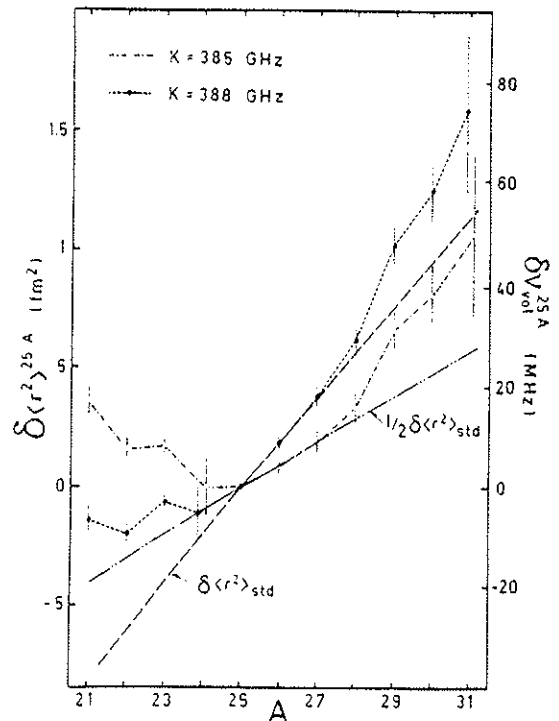


FIG. 11. Differences of mean square nuclear charge radii with respect to ^{25}Na for two values of the mass effect constant K . The error bars are due only to the experimental uncertainties.

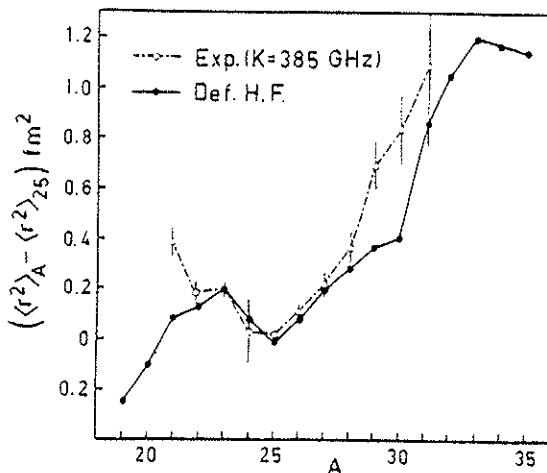


FIG. 12. Comparison of experimental values for the change in the mean square nuclear charge radius (for $K = 385$ GHz) and of values obtained from deformed Hartree-Fock calculations (from Ref. 2.).

right order of magnitude for the specific mass shift. For the isotope pair 23-25 we obtain from $K = 385$ GHz a total mass effect of 1341 MHz, and after subtracting the normal mass shift which can be calculated exactly (see, e.g., Ref. 18) we find a specific mass shift of about 370 MHz which is large compared to a theoretical value of 60 MHz calculated with the Hartree-Fock technique.²⁴ The mean square charge radii extracted from the isotope shift data can be compared to values derived from deformed Hartree-Fock calculations.³ The $\delta\langle r^2 \rangle$ values obtained when assuming an isotope shift "discrepancy" $\xi = 0.5$ are in good agreement with the calculated ones for $^{23-28}\text{Na}$ and ^{31}Na . Between ^{28}Na and ^{31}Na the experimental curve increases more monotonically than the theoretical curve which shows a sudden increase at ^{31}Na (see Fig. 12).

VI. CONCLUSION

The present investigation extends the data on spins and magnetic moments to the sodium isotopes $^{26-31}\text{Na}$. The comparison to Nilsson model calculations gives some estimates on nuclear deformation. From the precise determination of the isotope shift of the D_1 line of the isotopes $^{21-31}\text{Na}$, clear evidence of volume shift contributions is obtained. The interpretation in terms of nuclear charge radius changes also gives information on nuclear deformation, although there remains the uncertainty introduced by the specific mass effect. The information on nuclear deformation extracted from the isotope shifts is in agreement with those obtained from spins and magnetic moments. Indeed, the spins and magnetic moments as well as the charge radii indicate prolate deformation for

$^{21-24}\text{Na}$, lying in an already well established region of positive deformation, and also for $^{28-31}\text{Na}$, while $^{25-27}\text{Na}$ may be considered as having almost spherical nuclei.

To check this analysis of nuclear deformation, further measurements are required. Measurements in the neighboring elements Mg and Ne should exhibit a similar structure of the nuclear radius changes. A determination of the static quadrupole moments of the sodium isotopes by measuring the hyperfine structure of the D_2 line is planned and should give further information on nuclear deformation. An improved accuracy in the ^{30}Na and ^{31}Na isotope shift measurements and an extension to ^{32}Na (for which according to the production cross section only 0.2 counts per proton pulse are expected) should clarify the structure in the changes of charge radii around the neutron number $N = 20$.

ACKNOWLEDGMENTS

It is a pleasure to acknowledge the able assistance of R. Fergeau, M. Jacotin, and J. F. Kepinski in building and setting up the mass spectrometer, and related equipment and shielding, as well as maintaining it during the run. We are indebted to C. Vialle for the excellent contribution in maintaining a stable laser operation. We thank G. Le Scornet for writing the computer programs on PDP 15, B. Rosenbaum for building the data acquisition system, J. Biderman and D. Barbet for making the target and ionizer, and R. Baronnet for building the ^{23}Na reference atomic beam apparatus. We thank A. Ball, J. M. Michaud, J. Zaslavsky, and all the members of the Experimental Facilities Division and of the P.S. staff for maintaining the high intensity proton beam. One of us (S.B.) wishes to acknowledge receipt of a fellowship from the Deutsche Forschungsgemeinschaft.

APPENDIX A: PRINCIPLE OF CALCULATIONS OF THE OPTICAL PUMPING

For the hyperfine component $^2S_{1/2}, F = ^2P_{1/2}, F'$ of the D_1 line the evolution of the populations of the Zeeman sublevels of the ground state is given by the equations

$$\frac{dp_m}{dt} = -p_m \sum_M (1 - E_{Mm}) \frac{A_{mM}}{T_p} + \sum_M \sum_{m' \neq m} \frac{E_{Mm'} A_{m'M}}{T_p} p_{m'}$$

$$\frac{dp_{\bar{m}}}{dt} = \sum_M \sum_m \frac{E_{M\bar{m}} A_{mM}}{T_p} p_m,$$

where the quantum numbers m and M denote the Zeeman sublevels of the hyperfine levels F and F' , respectively, and \bar{m} denotes the sublevels of the ground state hyperfine level not involved in

the transition. A_{mM}/T_p is the absorption probability per unit time, where

$$A_{mM} \propto \begin{pmatrix} F & 1 & F' \\ -m & q & M \end{pmatrix}^2 (2F+1)(2F'+1) \begin{Bmatrix} F & 1 & F' \\ J' & I & J \end{Bmatrix}^2,$$

with $q = \pm 1$ for σ^- or σ^+ light. The pumping rate $1/T_p$ is proportional to the light power density W .²⁵ E_{Mm} is the emission probability from the excited sublevel M to the ground state Zeeman sublevel m . We normalize the E_{Mm} as

$$\sum_m E_{Mm} + \sum_{\bar{m}} E_{M\bar{m}} = 1.$$

APPENDIX B: TRANSMISSION OF THE SIX-POLE MAGNET

In the strong magnetic six-pole field the nuclear spin and the electronic angular momentum are decoupled. The sodium atoms have either $m_J = +\frac{1}{2}$ or $m_J = -\frac{1}{2}$ with the corresponding effective magnetic moment $\mu_{\text{eff}} = \pm\mu_B$. Then it can be shown²⁶ that in the inhomogeneous six-pole field, in which the atoms are submitted to a radial force, the atoms with $m_J = +\frac{1}{2}$ follow a sinusoidal trajectory and those with $m_J = -\frac{1}{2}$ an hyperbolic one.

The angular frequency of the harmonic oscillation depends on μ_{eff} , on the atomic mass m , and on the characteristics of the magnet used. The

transmission of the six-pole magnet is conveniently described by the transmission solid angles Ω^+ and Ω^- for $m_J = \pm\frac{1}{2}$. To calculate these quantities we follow the considerations developed in Ref. 26

$$\Omega^*(\eta) = \Pi[X_o^*(\eta)]/L,$$

where $X_o^*(\eta)$ is the maximum transverse entrance coordinate insuring that throughout the magnet length the transverse deviation is smaller or equal to the magnet radius gap. $X_o^*(\eta)$ is calculated from the equation of motion. L is the distance from the atomic beam source to the magnet entrance. η is defined as $\eta = \alpha\sqrt{2}/V$, $\alpha = (2kT/m)^{1/2}$. $\Omega^-(\eta)$, for atoms in the state $m_J = -\frac{1}{2}$ is similarly defined. The efficiency of the six-pole magnet as a state selector is defined by a parameter s

$$s = \frac{N^+ - N^-}{N^+ + N^-},$$

where

$$N^\pm \propto \int_0^\infty F_{\text{beam}}(\eta)\Omega^\pm(\eta)d\eta.$$

$F_{\text{beam}}(\eta)$ is the beam velocity distribution. N^+ and N^- are the number of transmitted atoms in the state $m_J = +\frac{1}{2}$ and $m_J = -\frac{1}{2}$, respectively, averaged over the velocity distribution of the beam.

[†]Presently at Gesellschaft für Schwerionenforschung—D 6100 Darmstadt 1, Germany
[‡]On leave from University of Bonn, Bonn, Germany
¹C. Thibault, R. Klapisch, C. Rigaud, A. M. Poskanzer, R. Prieels, L. Lessard, and W. Reisdorf, *Phys. Rev. C* **12**, 644 (1975).
²X. Campi, H. Flocard, A. K. Kerman, and S. Koonin, *Nucl. Phys. A* **151**, 193 (1975).
³C. Thibault, G. Audi, M. Epherre, G. Huber, R. Klapisch, and F. Touchard (unpublished).
⁴C. Détraz, D. Guillemaud, G. Huber, R. Klapisch, M. Langevin, F. Naulin, C. Thibault, L. C. Carraz, and F. Touchard, *Phys. Rev. C* (to be published).
⁵B. J. Cole, A. Watt, and R. R. Whitehead, *J. Phys. A* **7**, 1399 (1974).
⁶H. T. Duong and J. L. Vialle, *Opt. Commun.* **12**, 71 (1974).
⁷G. Huber, C. Thibault, R. Klapisch, H. T. Duong, J. L. Vialle, J. Pinard, P. Juncar, and P. Jacquinet, *Phys. Rev. Lett.* **34**, 1209 (1975).
⁸G. Huber, R. Klapisch, C. Thibault, H. T. Duong, P. Juncar, S. Liberman, J. Pinard, J. L. Vialle, and P. Jacquinet, *C. R. Acad. Sc. Paris*, **B282**, 119 (1976).
⁹A. M. Poskanzer, G. W. Butler, and E. K. Hyde, *Phys. Rev. C* **3**, 882 (1971).
¹⁰C. Thibault-Philippe, thesis, Orsay, 1971 (unpublished).
¹¹C. Thibault, G. Huber, G. Audi, M. Epherre, D. Guil-

lemaud, R. Klapisch, F. Naulin, and F. Touchard, (unpublished).
¹²P. Juncar and J. Pinard, *Opt. Commun.* **14**, 438 (1975); P. Juncar, thesis, Orsay, 1976 (unpublished).
¹³W. Weiershausen, *Ann. Phys. (Leipzig)* **15**, 252 (1965); in *Advances in Mass Spectrometry*, edited by W. L. Mead, (The Institute of Petroleum, London 1966), Vol. 3, p. 755.
¹⁴S. G. Nilsson, K. Dan, *Vidensk. Selsk. Mat. Fys. Medd.* **29**, No. 16 (1955).
¹⁵F. A. Babushkin, *Zh. Eksp. Teor. Fiz.* **44**, 1667 (1963). [*Sov. Phys. JETP* **17**, 1118 (1963)].
¹⁶J. Bauche, private communication.
¹⁷R. Neumann, F. Trager, J. Kowalski, and G. zu Putlitz, *Z. Phys.* **A279**, 249 (1976).
¹⁸K. Heilig and A. Steudel, *At. Nucl. Data Tables* **14**, 613 (1974).
¹⁹J. Bauche and R. J. Champeau, in *Advances in Atomic and Molecular Physics* (Academic Press, New York, 1976), Vol. 12.
²⁰A. Bohr and B. R. Mottelson, *Nuclear Structure* (Benjamin, New York, 1969), Vol. 1.
²¹R. L. B. Elton, *Landolt-Börnstein: Nuclear Radii*, edited by H. R. Collard, R. L. B. Elton and R. Hofstadter (Springer, Berlin, 1967), New Series, Group I, Vol. 2.
²²J. Bonn, G. Huber, H. J. Kluge, and E. W. Otten, *Z. Phys.* **A276**, 203 (1976).

²³J. M. Eisenberg and W. Greiner, *Nuclear Theory* (North-Holland, Amsterdam, 1975), Vol. 1.

²⁴J. Bauche, *J. Phys.* 35, 19 (1974).

²⁵C. Cohen-Tannoudji and A. Kastler, in *Progress in*

Optics, edited by E. Wolf (North-Holland, Amsterdam, 1966), Vol. V.

²⁶V. Hughes, R. L. Long, Jr., M. S. Lubell, M. Posner, and W. Raith, *Phys. Rev. A* 5, 195 (1972).

ANNEXE VIII

SPECTROSCOPIE. — *Détection des résonances optiques par photoionisation à partir du niveau supérieur, dans un jet atomique.* Note (*) de MM. **HONG TUAN DUONG, PIERRE JACQUINOT**, Membre de l'Académie, **SYLVAIN LIBERMAN, JACQUES PINARD** et **JEAN-LOUIS VIALLE**.

Description et essai préliminaire d'une méthode permettant de détecter non optiquement des résonances optiques à partir d'un niveau fondamental ou excité. La limite de résolution obtenue sur la raie D₁ du sodium avec un laser accordable à colorant (pour produire la résonance) et une lampe à mercure (pour produire l'ionisation) est de l'ordre de 50 MHz.

Les méthodes non optiques de détection des résonances optiques présentent dans certains cas spécifiques (atomes radioactifs par exemple) des avantages de sensibilité par rapport aux méthodes optiques. L'une d'entre elles, dont le principe est dû à Rabi (1) a permis récemment (2),

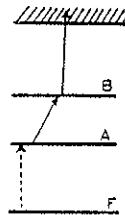


Fig. 1

à l'aide d'un laser monomode accordable, de résoudre complètement — à titre d'exemple — la structure hyperfine de la raie D₂ du sodium. Une autre méthode, utilisant la déviation d'un jet atomique par recul des atomes résonnants a donné (3) des résultats comparables.

Chacune de ces méthodes a ses domaines spécifiques d'application, mais toutes deux sont difficiles à appliquer dans le cas où la transition étudiée a lieu entre deux états excités A et B car les atomes non excités risquent alors de produire des fonds importants. La méthode proposée ici semble au contraire pouvoir être appliquée aussi bien au cas où le niveau A est un niveau excité qu'au cas où il se confond avec le fondamental F.

Cette méthode consiste à soumettre les atomes d'un jet atomique simultanément au rayonnement d'un laser accordable pour produire la transition à étudier $A \rightarrow B$ (fig. 1) et au rayonnement d'une autre source (de préférence, mais pas nécessairement, un laser) de fréquence juste suffisante pour produire la photoionisation à partir du niveau B. Dans ces conditions

il y a production d'ions si, et seulement si, le laser est accordé sur la transition $A \rightarrow B$: les ions ainsi formés sont facilement séparés des atomes neutres et détectés soit électriquement, soit par comptage dans le cas d'atomes radioactifs. Il n'est pas nécessaire que le faisceau ionisant soit très monochromatique ni très bien accordé : il suffit que sa fréquence soit aussi voisine que possible du seuil d'ionisation à partir du niveau B.

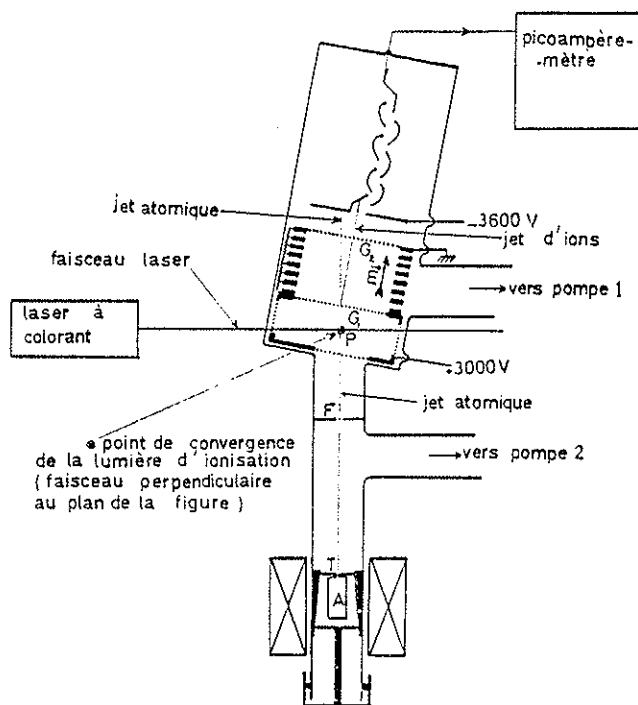


Fig. 2. — Schéma de l'appareil.

Une expérience de principe a été faite afin de comparer cette méthode aux précédentes [(²), (³)], sur les mêmes structures hyperfines (raies D_1 ou D_2 $3^2S_{1/2} - 3^2P_{1/2, 3/2}$ du sodium) et en utilisant le même laser accordable, au moyen d'un appareil à jet atomique simplifié.

L'appareil de jet atomique (fig. 2), de petite dimension (50 cm environ), comprend un four à sodium A en cuivre d'où la vapeur de sodium peut s'échapper par un trou T de 1 mm de diamètre. Un thermocouple repère la température. Le sodium gazeux qui sort du four par le trou T est ensuite collimaté par une fente F de 3 mm de large située à 18 cm du four, ce qui donne une collimation *théorique* de 90.

Le jet d'atomes pénètre ensuite dans une région où le potentiel électrique est de +3 000 V. On fait converger les deux faisceaux lumineux

au même point P sur le passage du jet atomique. Les ions créés en P dans le jet par photoionisation traversent la grille G_1 et sont ensuite accélérés entre les grilles G_1 et G_2 par un champ électrique bien uniforme. Ce champ est créé par un empilement de couronnes circulaires métalliques reliées entre elles par des résistances élevées égales. Les ions accélérés arrivent sur l'entrée d'un multiplicateur d'électrons portée à $-3\,600$ V. Le courant, recueilli à la sortie du multiplicateur, est enregistré en même temps que varie la fréquence du laser. La partie supérieure du jet est inclinée d'environ 10° par rapport à la direction du jet incident ceci afin de séparer le jet d'atomes qui reste vertical du faisceau d'ions qui suit à peu près les lignes de champs entre G_1 et G_2 . On évite ainsi que les atomes alcalins ne viennent se déposer sur la cathode du multiplicateur. Le pompage est assuré par deux pompes secondaires. La pression, mesurée avec une jauge à ionisation est d'environ $6 \cdot 10^{-8}$ Torr mais doit être plus élevée dans le voisinage du four.

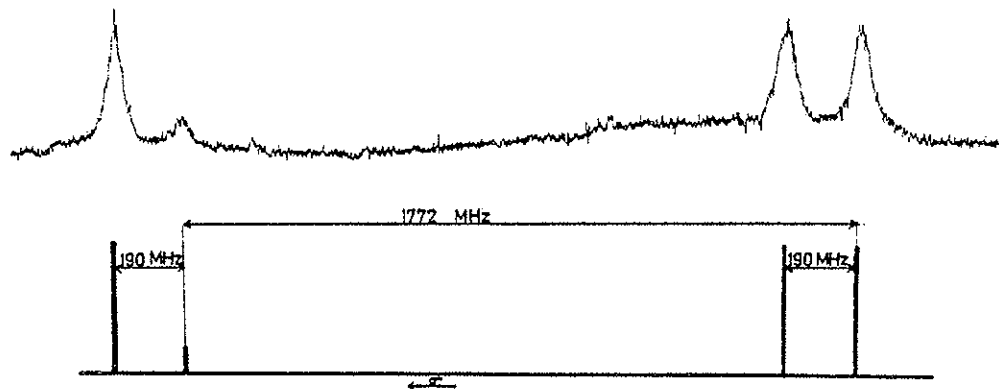


Fig. 3. — Enregistrement de la structure hyperfine de la raie D_1 .

Dans l'expérience préliminaire réalisée le faisceau ionisant est fourni par une lampe à mercure à haute pression HB 500 qui possède entre autres des raies intenses vers $3\,600 \text{ \AA}$, alors que le seuil de photoionisation à partir des niveaux 3^2P du sodium est de $4\,082 \text{ \AA}$. Pour ioniser les atomes neutres il faudrait $\lambda < 2\,500 \text{ \AA}$: les enveloppes et les lentilles en verre arrêtant ces radiations, aucun autre filtrage n'a été introduit sur ce faisceau.

On peut chercher à estimer, au moins grossièrement, le rapport ρ du nombre d'ions formés au nombre d'atomes incidents en utilisant les données suivantes :

— section efficace de photoionisation à partir du niveau $3^2P_{1/2}$: 10^{-18} cm^2 (valeur moyenne entre $3\,000$ et $4\,000 \text{ \AA}$);

— puissance rayonnée par la lampe à mercure dans la région $3\,000\text{-}4\,000 \text{ \AA}$: 6 W/sr ;

*

- angle solide du faisceau ionisant au niveau de la lampe : 0,2 sr;
- fraction de l'image de la lampe occupée par la zone d'interaction entre le faisceau laser et le jet atomique : 0,1. La puissance utilisée pour la photoionisation est alors de l'ordre de 0,1 W;
- rapport entre les populations du niveau $^3P_{1/2}$ et $^3S_{1/2}$: 10^{-3} . Cette valeur très faible est due au fait que la puissance de notre laser dans son état actuel n'est que de quelques dixièmes de milliwatts.

On trouve alors que ρ est seulement de l'ordre de 10^{-7} . En outre le nombre d'atomes qui arrivent par seconde dans la région d'ionisation peut être estimé [voir par exemple (1)] connaissant la température du four (360°) et les dimensions géométriques du jet à $4 \cdot 10^{13}$ atomes/s.

On devrait dans ces conditions, en tenant compte du gain du multiplicateur ($G \simeq 10^6$) obtenir un signal de l'ordre de 10^{-7} A. En fait dans l'expérience réalisée le signal est de l'ordre de 10 fois plus faible que cette estimation. Nous pensons que cette perte de signal est due à la qualité insuffisante du vide dans notre appareil, le gaz résiduel produisant une diffusion assez importante du jet. On peut en effet observer une fluorescence uniforme dans le volume de l'appareil en l'éclairant avec une lampe classique à sodium. En outre on observe dans les enregistrements un fond sur lequel se détachent les raies fines provenant des atomes du jet : ce fond a un « profil Doppler » et peut donc être attribué aux atomes de sodium diffusés en dehors du jet; l'intensité réelle de ce dernier est ainsi notablement inférieure à l'intensité estimée.

La figure 3 montre un enregistrement de la raie D_1 du sodium (dont le fond a été soustrait par déplacement de zéro) : sur la même figure sont indiquées les valeurs relatives connues des fréquences et intensités, l'échelle des abscisses étant ajustée (le laser n'est pas étalonné en fréquence) pour obtenir la coïncidence. Le fond qui a été soustrait est dans cette expérience, de l'ordre de 3 fois le signal, dont un tiers peut être attribué aux atomes de sodium diffusés, et deux tiers (qui subsistent quand le laser est arrêté) proviennent probablement de l'ionisation de molécules des gaz résiduels, dans leur état fondamental. Un appareil permettant un meilleur vide et l'utilisation éventuelle d'un séparateur électromagnétique de masses ioniques devraient supprimer ces fonds. De même l'utilisation d'un laser plus puissant pour l'excitation $A \rightarrow B$ et d'un laser au lieu d'une source classique pour l'ionisation devraient améliorer grandement le rapport signal/bruit. La largeur des raies sur l'enregistrement est de 50 MHz : cette largeur est plus grande que dans les expériences citées en (2) et (3) et est probablement due au faible taux de collimation effectif obtenu pour le jet; dans un appareil donnant un jet mieux défini, elle sera limitée par les mêmes facteurs que pour les deux autres méthodes.

En conclusion cette expérience préliminaire nous paraît démontrer la valeur d'un troisième procédé de détection non optique des résonances optiques dans un jet atomique, complémentaire de deux autres procédés existants.

(*) Séance du 21 mai 1973.

(¹) M. L. PERL, I. I. RABI et B. SENITZKY, *Phys. Rev.*, 98, 1955, p. 611.

(²) H. T. DUONG, P. JACQUINOT, S. LIBERMAN, J. L. PICQUÉ, J. PINARD et J. L. VIALLE, *Opt. Comm.*, 7, 1973, p. 371.

(³) P. JACQUINOT, S. LIBERMAN, J. L. PICQUÉ et J. PINARD, *Opt. Comm.* (à paraître).

(⁴) N. F. RAMSEY, *Molecular beams*, Oxford University Press, p. 16.

*Laboratoire Aimé Cotton,
C. N. R. S. II,
Campus Universitaire,
91405 Orsay.*

ANNEXE IX

Experimental separation and study of the two partial photoionisation cross sections $\sigma_{3p,s}$ and $\sigma_{3p,d}$ from the 3p state of sodium

H T Duong, J Pinard and J-L Vialle

Laboratoire Aimé Cotton, CNRS II, Bâtiment 505, 91405 Orsay, France

Received 1 July 1977

Abstract. The two partial photoionisation cross sections $\sigma_{3p,s}$ and $\sigma_{3p,d}$ from the 3p state of Na were measured separately using an atomic beam of sodium and two appropriately polarised light sources. The observed variations of the two partial cross sections with the wavenumber of the photoionising light in the range 24000–29000 cm^{-1} above threshold are compared with earlier theoretical results.

1. Introduction

The photoionisation cross sections from the ground state of alkali atoms have an obviously non-hydrogenic character (Marr and Creek 1968, Bardsley 1973). Experimental measurements on similar cross sections from excited levels are scarce (Rothe 1969, 1971, Nygaard 1975, Ambartzumian *et al* 1976). A theoretical study (Aymar *et al* 1976) has pointed out that, for the ns levels, the non-hydrogenic behaviour of the cross sections is qualitatively the same as for the ground state. For the other excited levels ($l \neq 0$), the total photoionisation cross section $\sigma_{nl}(\epsilon)$ is the sum of the two partial cross sections $\sigma_{nl,l-1}(\epsilon)$ and $\sigma_{nl,l+1}(\epsilon)$ corresponding respectively to the transitions $\Delta l = -1$ and $\Delta l = +1$ from the bound state to the continuum. In certain cases, the non-hydrogenic behaviour of each of these partial cross sections is not observable in the sum; therefore it is interesting to measure the two partial cross sections separately. What we have done in the experiment is described below. We have studied the two partial photoionisation cross sections $\sigma_{3p,s}(\epsilon)$ and $\sigma_{3p,d}(\epsilon)$ from the 3p state of ^{23}Na in terms of the photon energy ϵ .

2. Principle of the experiment

It is possible to perform this experiment in a region of zero magnetic field, but because of the Earth's magnetic field we need an external weak magnetic field to get a total field with a convenient direction. Then, let us suppose that we are able to put the atomic system in a state of the 3p configuration with quantum number $m_L = +1$. Starting from this state, a σ^+ polarised uv light beam will bring these atoms to a state of the continuum with $m_L = +2$, which is necessarily a state of the d continuum; in this case, the cross section $\Sigma^+(\epsilon)$ will depend only on $\sigma_{3p,d}(\epsilon)$.

On the other hand, if the photoionising light is polarised σ^- , the final state in the continuum will be a state with $m_L = 0$ and consequently the cross section $\Sigma^-(\epsilon)$ will be a linear combination of $\sigma_{3p,s}(\epsilon)$ and $\sigma_{3p,d}(\epsilon)$. One can easily calculate both $\Sigma^+(\epsilon)$ and $\Sigma^-(\epsilon)$ (see, for example, Sobel'man 1972):

$$\Sigma^+(\epsilon) = C \times \begin{pmatrix} 2 & 1 & 1 \\ -2 & 1 & 1 \end{pmatrix}^2 \sigma_{3p,d}(\epsilon) = C \times \frac{1}{3} \sigma_{3p,d}(\epsilon)$$

$$\Sigma^-(\epsilon) = C \left[\begin{pmatrix} 2 & 1 & 1 \\ 0 & -1 & 1 \end{pmatrix}^2 \sigma_{3p,d}(\epsilon) + \begin{pmatrix} 0 & 1 & 1 \\ 0 & -1 & 1 \end{pmatrix}^2 \sigma_{3p,s}(\epsilon) \right] = C \left[\frac{1}{30} \sigma_{3p,d}(\epsilon) + \frac{1}{3} \sigma_{3p,s}(\epsilon) \right]$$

C being a constant.

Using optical Zeeman pumping, it is possible to obtain atoms in the $3p$ level all with $m_L = +1$ (Walther 1975, Grove *et al* 1977). The sodium atoms are excited from the sublevel $F = 2$ of the ground state into the hyperfine sublevel $F' = 3$ of the $3^2P_{3/2}$ excited state by laser light (figure 1(a)). If the light is polarised σ^- with respect to the magnetic-field direction, the successive absorption and spontaneous emission processes realise an optical Zeeman pumping, such that all the atoms initially in the sublevel $F = 2$ of the ground state will gather in its Zeeman state $F = 2, m_F = 2$. Only the sublevel $F' = 3, m_{F'} = 3$ of the excited level can then be reached by absorption of another σ^- polarised photon. For this sublevel we know that $m_L = +1$ (figure 1(b)).

In our experiment the UV beam at the interaction region has a smaller section than the yellow pumping-laser beam and runs inside it. Moreover, the pumping time is very short compared to the time that the atoms spend in the yellow beam. Therefore, all the atoms are pumped when they pass through the UV beam.

A monochromatic tunable UV light beam photoionises the atoms from the excited level ($3^2P_{3/2}, F' = 3, m_{F'} = 3$). We measure $N(t_0)$, the number of ions produced during time t_0 , $n(t_0)$, the number of UV photons crossing the atomic beam during the same time, and I_f , the D₂ line fluorescence signal of the atomic beam. Then we calculate the quantity $S = N(t_0)/[n(t_0)I_f]$ which is proportional to the cross section σ of interest.

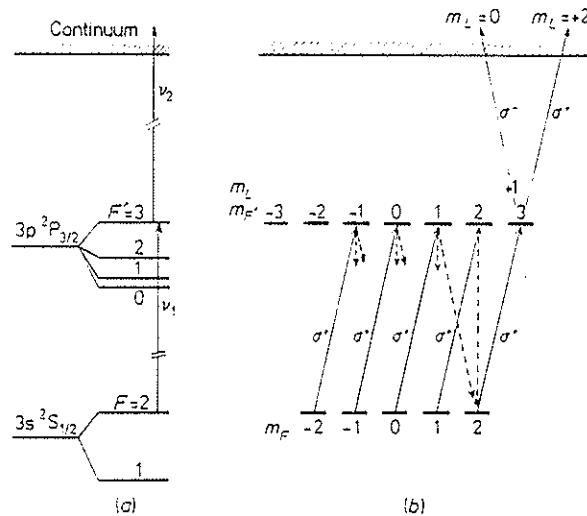


Figure 1. (a) Transitions and atomic levels involved in the experiment. (b) Optical pumping from the ground state.

The quantities S_+ and S_- , measured in our experiment with a UV light respectively polarised σ^+ and σ^- are connected to the cross sections $\Sigma^+(\epsilon)$ and $\Sigma^-(\epsilon)$ calculated above and can be written:

$$S_+(\epsilon) = k \times \frac{1}{3}\sigma_{3p,d}(\epsilon)$$

$$S_-(\epsilon) = k\left[\frac{1}{3}\sigma_{3p,d}(\epsilon) + \frac{1}{3}\sigma_{3p,s}(\epsilon)\right]$$

where k is a constant. Therefore

$$S(\epsilon) = S_+(\epsilon) + S_-(\epsilon) = \frac{1}{3}k[\sigma_{3p,s}(\epsilon) + 0.7\sigma_{3p,d}(\epsilon)]$$

and

$$\rho = \frac{S_+(\epsilon)}{S_-(\epsilon)} = \frac{0.6\sigma_{3p,d}(\epsilon)}{\sigma_{3p,s}(\epsilon) + 0.1\sigma_{3p,d}(\epsilon)}$$

3. Experimental set-up

The experimental set-up is represented schematically in figure 2. The sodium beam coming out from the oven is collimated by two diaphragms cooled at liquid-nitrogen temperature. It interacts with the two laser beams at P. The thickness of the atomic beam at the interaction region is about 5 mm and its density is of the order of 10^7 atoms cm^{-3} . The two laser beams, propagating in opposite directions, are collinear and perpendicular to the atomic beam direction. Two Helmholtz coils (not shown) provide a magnetic field B of a few gauss, whose direction is parallel to the light beam.

The first laser, whose frequency ν_1 is tuned to the transition $3^2S_{1/2}$, $F = 2 \rightarrow 3^2P_{3/2}$, $F' = 3$, is a cw dye laser (Spectra Physics 580). The ν_1 light is circularly polarised by a quarter-wave plate L_1 . The fluorescence signal of the atomic beam, detected by a photomultiplier (PM1), is used to lock the laser frequency on the atomic transition and to monitor the population of the excited state ($3^2P_{3/2}$, $F' = 3$, $m_{F'} = 3$).

The photoionising light is a UV pulsed laser, whose tunable frequency ν_2 is obtained in the following way. By frequency doubling, the light of a Nd YAG laser is set to pump a parametric oscillator, whose output frequencies (red and infrared) are simultaneously tunable by varying the crystal temperature of the parametric oscillator (Chromatix Models 1000 and 1020). By a second frequency doubling (using a LiIO_3 crystal) the red light of the parametric oscillator is converted into UV light tunable in the wavenumber region $24000\text{--}29000$ cm^{-1} . This wavenumber region permits the study of the photoionisation cross sections above the threshold at 24476 cm^{-1} . To scan the UV frequency, the temperature of the parametric oscillator crystal is changed and the LiIO_3 crystal is rotated to meet the phase-matching condition.

The UV light beam is filtered and focused on the atomic beam into a spot entirely located inside the cross section of the yellow laser light. The linearly polarised UV light is transformed into circularly polarised light σ^+ or σ^- by a quarter-wave plate L_2 which is an exact quarter-wave plate at 3800 Å, i.e. at the centre of the scanning range. The UV pulse has a duration of 100 ns, a repetition rate of 50 Hz and delivers a peak power of a few tens of watts. Since the UV light is obtained through numerous non-linear optical processes, its intensity fluctuates appreciably. A small part of the

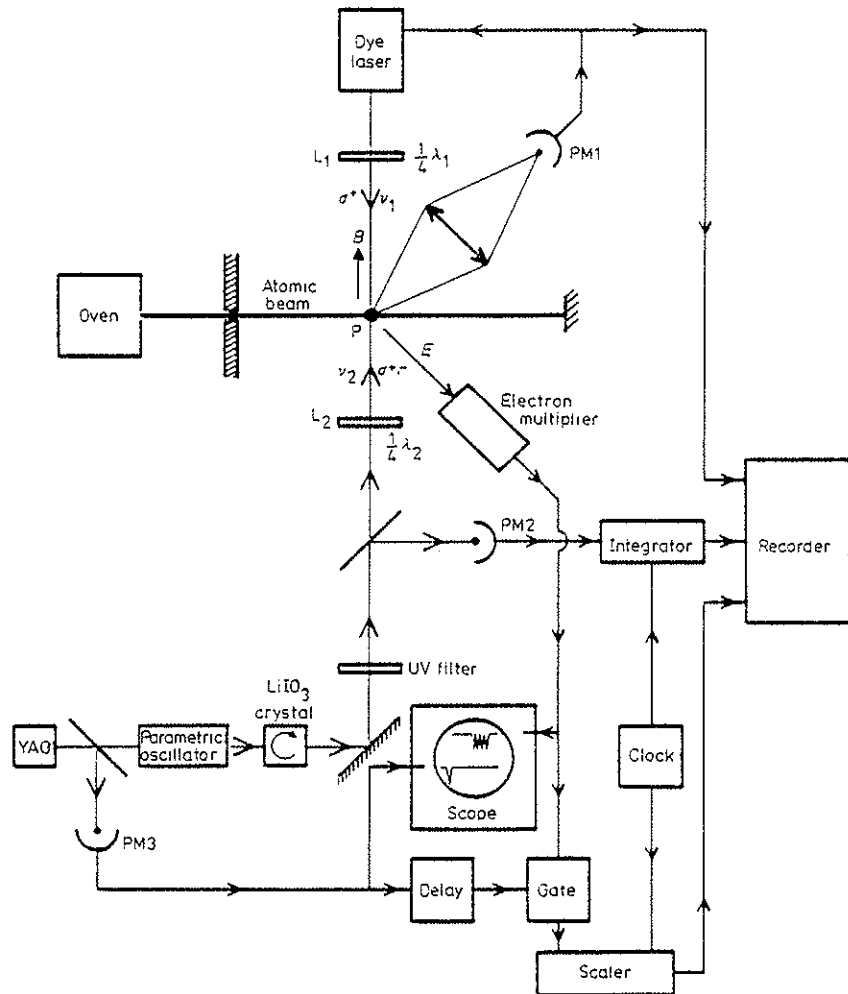


Figure 2. General scheme of the experimental set-up.

UV light is sent to a photomultiplier (PM2) and the signal is integrated during each measuring sequence.

The sodium ions produced by photoionisation follow the field lines of an homogeneous electrostatic field E (about 2 V cm^{-1}) and strike the first dynode of an electron multiplier located about 50 cm away from the interaction region. The output pulses of the ion-electron multiplier are observed on a scope, triggered by the Nd YAG laser light pulses via photomultiplier PM3. We can then see the transit time and the velocity dispersion of the ions created by photoionisation. This allows us to adjust the delay and width of the gate of the counting system and maximise the signal-to-noise ratio. For each measurement, we count the ions during an adjustable period (about 30 s) set by a clock. This same clock sets the integrating time for the UV photons counting system.

4. Measurements and results

In a sequence, the D_2 line fluorescence signal, the UV photon integrated signal and the ion-counting-system signal are recorded simultaneously. For each UV frequency used, the measurements are repeated many times for both the σ^+ and the σ^- polarisations. From these recorded signals, $S_+(\epsilon)$ and $S_-(\epsilon)$, as defined previously, are calculated as well as their ratio ρ .

Since the L_2 plate is an exact quarter-wave plate only at $\lambda_2 = 3800 \text{ \AA}$, the transmitted light does not remain rigorously σ^+ or σ^- when the frequency of the UV light is tuned. Therefore, we have to express the measured signals S'_+ and S'_- in terms of the true S_+ and S_- quantities

$$S'_+ = S_+ \cos^2 \frac{1}{2}\phi + S_- \sin^2 \frac{1}{2}\phi \quad (1)$$

$$S'_- = S_+ \sin^2 \frac{1}{2}\phi + S_- \cos^2 \frac{1}{2}\phi$$

with $\phi = 2\pi\delta/\lambda - \pi/2$, δ being the path difference introduced by L_2 between the ordinary and extraordinary rays. From the ratio of the measured signals, $\rho' = S'_+/S'_-$, we can deduce the ratio $\rho = S_+/S_-$ provided ϕ is known since from equations (1) we have

$$\rho = \frac{\rho' \cos^2 \frac{1}{2}\phi - \sin^2 \frac{1}{2}\phi}{\cos^2 \frac{1}{2}\phi - \rho' \sin^2 \frac{1}{2}\phi}$$

To calculate ϕ , having measured it for the yellow D lines of sodium, we extrapolate to the UV wavelength range using an empirical formula (Beckers 1967). The ratio ρ obtained is plotted in figure 3 against the wavenumber of the UV light.

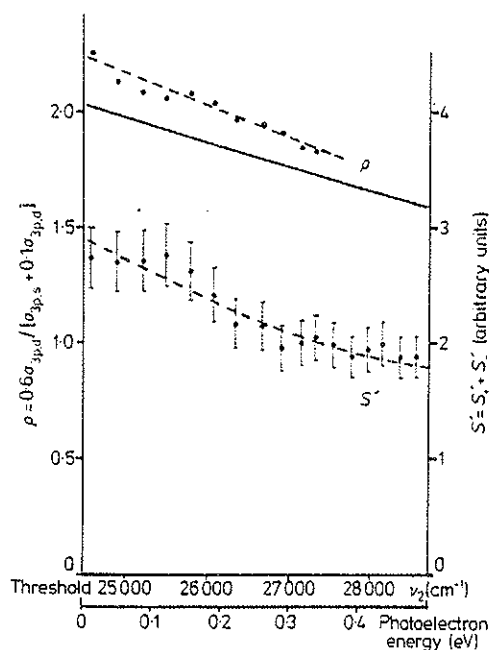


Figure 3. Variation of the ratio of the photoionisation cross sections with σ^+ and σ^- polarised light and variation of the photoionisation cross section with σ polarised light plotted against the wavenumber of the photoionising light for atoms initially in the state $3^3P_{3/2}$, $F' = 3$, $m_{F'} = 3$. Full curve, theory; broken curves, experiment.

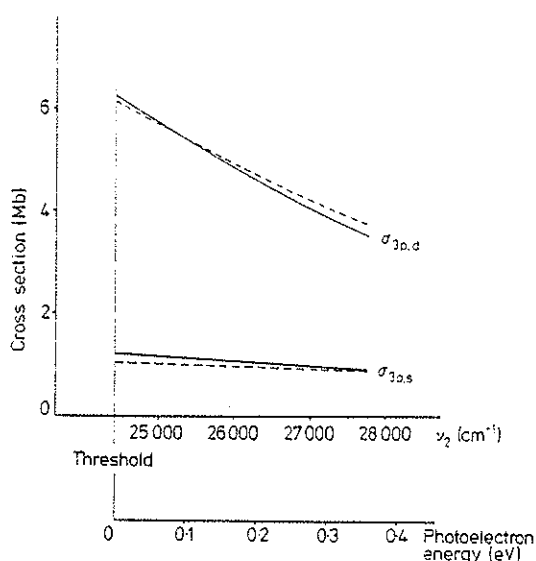


Figure 4. Experimental (this work, broken curves) and theoretical (Aymar *et al* 1976, full curves) results for the two partial photoionisation cross sections $\sigma_{3p,s}$ and $\sigma_{3p,d}$, above threshold, from the 3p level.

From the same equations (1), we see that the sum of the measured signals $S' = S'_+ + S'_-$ does not depend on ϕ and remains equal to S , i.e.

$$S'(\epsilon) = S(\epsilon) = \frac{1}{3}k[\sigma_{3p,s}(\epsilon) + 0.7\sigma_{3p,d}(\epsilon)].$$

In figure 3 we represent S' in arbitrary units plotted against wavenumber.

From these two curves, the partial cross sections $\sigma_{3p,s}$ and $\sigma_{3p,d}$ were deduced. They are compared to those calculated by Aymar *et al* (1976) in figure 4. We have adjusted the k factor in order to get the best fit between theoretical and experimental curves over the frequency range investigated. If we take into account an overall inaccuracy from 5 to 10% in the measured values we cannot see any discrepancy between the calculated and measured values for $\sigma_{3p,s}$ and $\sigma_{3p,d}$. The agreement is also good with the results of Rothe (1969) for the variation of the total cross section.

5. Conclusion

This experiment shows that the variations of the partial photoionisation cross sections above threshold can be measured. It would be interesting to extend these measurements to a broader wavelength range in order to observe the Cooper minimum predicted for the partial cross section $\sigma_{3p,d}$ and the strongly non-hydrogenic behaviour of this partial cross section.

The improvement of the experimental set-up is under way, using a Fresnel parallel-piped instead of the quarter-wave plate L_2 and setting the ion multiplier closer to the interaction region, about 10 cm compared to 50 cm at present. It is hoped that with this new apparatus more precise measurements will be made.

References

- Ambartzumian R V, Furzikov N P, Letokhov V S and Puretsky A A 1976 *Appl. Phys.* **9** 335-7
- Aymar M, Luc-Koenig E E and Combet-Farnoux F 1976 *J. Phys. B: Atom. Molec. Phys.* **9** 1279-91
- Bardsley J N 1973 *Case Studies in Atomic Physics* vol 4, ed E W McDaniel and M R C McDowell (Amsterdam: North-Holland) pp 299-368
- Beckers J M 1967 *Appl. Opt.* **6** 1279
- Grove R E, Wu F Y and Ezekiel S 1977 *Phys. Rev. A* **15** 227-33
- Marr G V and Creek D M 1968 *Proc. R. Soc. A* **304** 233-44
- Nygaard K J 1975 *Phys. Rev. A* **12** 1440-7
- Rothe D E 1969 *J. Quant. Spectrosc. Radiat. Transfer* **9** 49-62
- 1971 *J. Quant. Spectrosc. Radiat. Transfer* **11** 355-65
- Sobel'man I I 1972 *An Introduction to the Theory of Atomic Spectra* (Oxford: Pergamon) pp 321 and 359
- Walther H 1975 *Frontiers in Laser Spectroscopy, vol 1: Les Houches Session 27* ed R Balian, S Haroche and S Liberman (Amsterdam: North-Holland) p 127

ANNEXE X

DETECTION PAR PHOTOIONISATION DES NIVEAUX DE RYDBERG nF DANS LE SODIUM

H.T. DUONG, J. PINARD et J.-L. VIALLE

Laboratoire Aimé Cotton, C.N.R.S. II, Bât. 505, Campus d'Orsay, 91405 Orsay, France

Reçu le 5 Avril 1977

By three-step optical excitation levels nF , up to $n = 32$, of sodium atoms of an atomic beam, are populated. The excited atoms are simultaneously photoionized and detected by ion counting. The energies of the observed levels have been roughly measured.

Les progrès récents faits dans le domaine des lasers accordables permettent de peupler des états atomiques très excités. Ceci rend possible l'étude des propriétés des états atomiques de nombre quantique principal n élevé (Etats de Rydberg).

Les atomes portés dans ces états très excités peuvent être détectés de différentes façons:

— Une méthode classique consiste à observer la lumière de fluorescence émise par ces atomes [1]. Pour les valeurs de n élevées, c'est la méthode de détection par ionisation Stark et comptage des ions [2] qui semble le mieux adaptée. On peut également ioniser les atomes dans l'état excité par un rayonnement électromagnétique [3]. Les ions ainsi produits peuvent être détectés soit par une méthode de charge d'espace [4] soit par comptage avec un multiplicateur. Dans l'expérience que nous décrivons ici, nous avons fait appel à cette dernière méthode pour observer les niveaux nF du sodium jusqu'à $n = 32$. Ces niveaux sont peuplés par une excitation à trois étages. Deux lasers à colorant continus réalisent les deux premiers étages et permettent de peupler le niveau $4^2D_{5/2}$; un laser infrarouge pulsé accordable induit la transition $4D_{5/2} \rightarrow nF$ correspondant au troisième étage. Ce même rayonnement infrarouge photoionise les atomes portés dans l'état nF et sert donc simultanément pour l'excitation et pour la détection de la transition $4^2D_{5/2} \rightarrow nF$.

Le schéma de l'expérience est indiqué sur la figure 1. La vapeur de sodium sort d'un four chauffé à 350°C et forme un jet atomique dans une enceinte où la pression est de l'ordre de 10^{-7} mmHg. Des diaphragmes refroidis à l'azote liquide définissent la collimation du

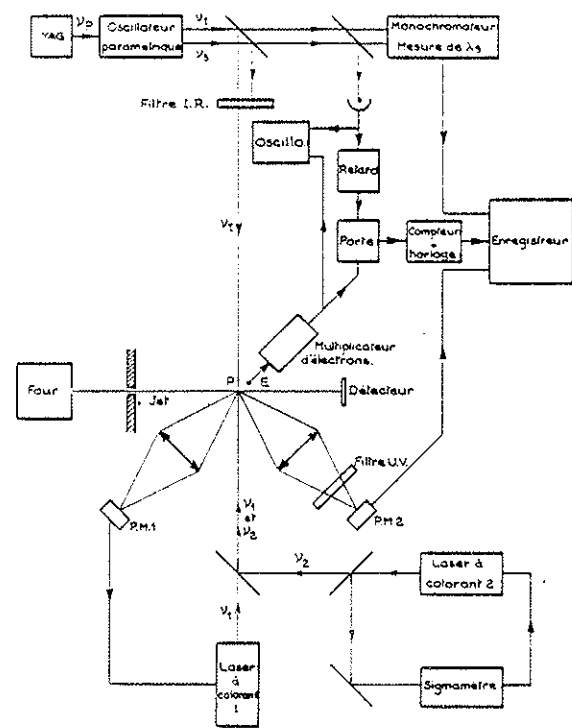


Fig. 1. Schéma de l'expérience.

jet. La température du four étant élevée, le jet est assez dense; on peut le détecter par ionisation de surface sur un filament chaud et les courants mesurés (quelques 10^{-8} A) correspondent à des densités, au niveau du détecteur, de l'ordre de 10^7 atomes/cm³.

— Ce jet de sodium est excité en un point P par

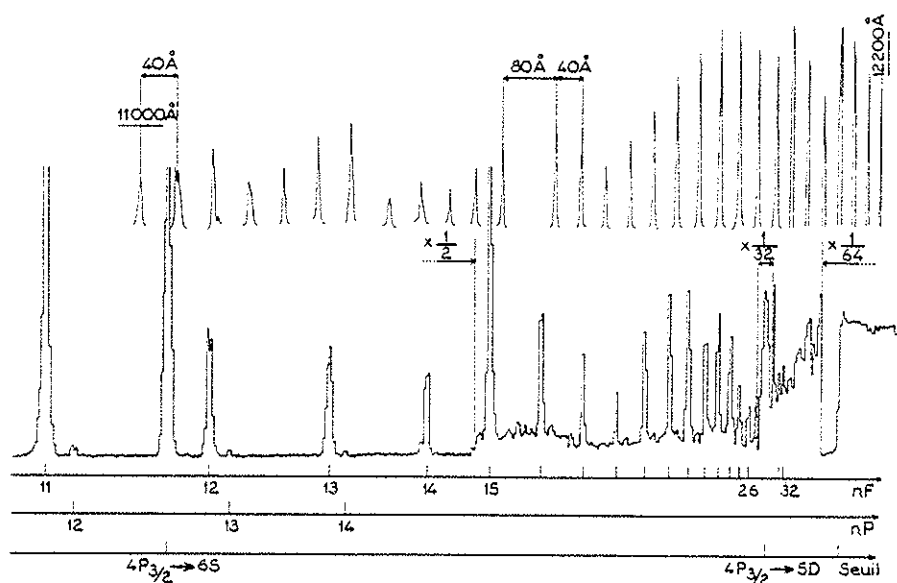


Fig. 3. Enregistrement du signal de photoionisation avec l'étalonnage simultané du balayage de l'infrarouge.

nage simultané de λ_S est représenté sur la figure 3. Dans le domaine de fréquence qu'il faut balayer pour décrire le spectre discret en-dessous du seuil d'ionisation ($6000-7000 \text{ cm}^{-1}$) l'oscillateur paramétrique fournit des rayonnements infrarouges de largeur spectrale environ 2 cm^{-1} . De plus le monochromateur utilisé ne donne de mesures reproductibles qu'à 1 cm^{-1} près. Pour ces deux raisons, la précision de nos mesures n'est que de 1 cm^{-1} environ.

Les niveaux nF n'étaient connus que jusqu'à $n = 17$; nous avons pu les observer et mesurer leurs énergies de $n = 11$ à $n = 26$ ainsi que $n = 31$ et $n = 32$. Au-delà de $n = 32$, la résolution est insuffisante (fig. 3). Les mesures de Gallagher [1] sur les niveaux nF ($n = 11$ à 17) conduisent à des défauts quantiques très faibles et à des écarts d'énergie, par rapport à un modèle hydrogénoïde, très inférieurs à la précision de nos mesures. On peut s'attendre à ce qu'il en soit de même pour les valeurs de n plus élevées. Le tableau 1 qui regroupe les résultats des mesures effectuées dans cette expérience et les valeurs attendues correspondantes montre que c'est effectivement le cas.

Les probabilités d'excitation des transitions $4^2D_{5/2} \rightarrow nP$ étant beaucoup plus faibles que celles des transitions $4^2D_{5/2} \rightarrow nF$ nous n'avons pu observer que les niveaux $n = 12, 13, 14 P$. Par ailleurs on observe sur les enregistrements deux raies qui ne correspondent

Tableau 1

| Niveaux | Energies calculées (cm^{-1}) ^{a)} | Résultats expérimentaux (cm^{-1}) |
|---------|---|--|
| 12p | 40466,03 ^{b)} | 40564 |
| 13p | 40705,68 ^{b)} | 40705 |
| 14p | 40814,47 ^{b)} | 40813 |
| 11f | 40542,5 | 40542 |
| 12f | 40687,60 | 40687 |
| 13f | 40800,33 | 40800 |
| 14f | 40889,78 | 40890 |
| 15f | 40961,94 | 40961 |
| 16f | 41021,00 | 41021 |
| 17f | 41069,95 | 41071 |
| 18f | 41110,96 | 41112 |
| 19f | 41145,65 | 41145 |
| 20f | 41175,31 | 41177 |
| 21f | 41200,82 | 41201 |
| 22f | 41222,93 | 41224 |
| 23f | 41242,21 | 41242 |
| 24f | 41259,14 | 41259 |
| 25f | 41274,07 | 41274 |
| 26f | 41287,32 | 41288 |
| 31f | 41335,46 | 41334 |
| 32f | 41342,49 | 41342 |

a) Le calcul est fait pour les niveaux nF en supposant un défaut quantique δ_f négligeable $E(nF) = E_{\text{seuil}} - R^*/n^2$ et d'après la valeur de [1] pour R^*

b) D'après C.E. Moore, Atomic Energy Levels, N.B.S., Washington D.C. (1952).

pas à des transitions $4^2D_{5/2} \rightarrow nF$ ni $4^2D_{5/2} \rightarrow nP$. L'explication est la suivante (voir fig. 2): les atomes de sodium portés dans l'état $4^2D_{5/2}$ peuplent par cascade le niveau $4^2P_{3/2}$. Ce niveau étant peuplé, quant on balaye la fréquence infrarouge ν_1 on excite les transitions ($4^2P_{3/2} \rightarrow 6S$) et ($4^2P_{3/2} \rightarrow 5$). Les atomes ainsi excités sont photoionisés — comme pour les niveaux F — par un deuxième photon infrarouge (lignes pointillées sur la figure 2). Le signal d'ions correspondant à la transition ($4^2P_{3/2} \rightarrow 5D$) masque les signaux d'ions que l'on devrait pour les transitions $4^2D_{5/2} \rightarrow nF$ ($n = 27, 28, 29, 30$) (fig. 3).

Cette expérience nous a permis d'observer des niveaux de Rydberg nF et de mesurer, bien qu'avec une précision médiocre, leurs énergies. Son intérêt est de montrer que l'on peut peupler raisonnablement ces niveaux. On peut alors envisager des expériences de spec-

troscopie à haute résolution à partir de ces niveaux: des expériences du même type que [1] par exemple, utilisant des radiofréquences, permettraient d'atteindre des états nG .

Références

- [1] T.F. Gallagher, R.M. Hill and S.A. Edelstein, Phys. Rev. A13 (1976) 1448.
- [2] T.W. Ducas, M.G. Littman, R.R. Freeman and D. Kleppner Phys. Rev. Lett. 35 (1975) 366.
- [3] G.S. Janes, I. Itzkan, C.T. Pike, R.H. Levy and L. Levin, I.E.E.E. QE. 12 (1976) 111.
- [4] D. Popescu, I. Popescu and J. Richter, Z. Physik. 226 (1969) 160.
- [5] S. Liberman and J. Pinard, Appl. Phys. Lett. 24 (1974) 142.
- [6] P. Juncar and J. Pinard, Optics Commun. 14 (1975) 438.

