

ORSAY
n° d'ordre:

THESE

DE DOCTORAT D'ETAT ES-SCIENCES PHYSIQUES

PRESENTÉE A L'UNIVERSITE DE PARIS-SUD

CENTRE D'ORSAY

PAR

Madame Nedjma BENDALI-CHALLANE

LABORATOIRE AIME COTTON

C. N. R. S.

POUR OBTENIR

LE GRADE DE DOCTEUR ES-SCIENCES

SPECTROSCOPIE LASER A HAUTE RESOLUTION SUR
JETS D'ATOMES THERMIQUES ET RAPIDES :
APPLICATION A L'ETUDE D'ISOTOPES PEU
ABONDANTS DE POTASSIUM ET FRANCIUM.
CONTRIBUTION METHODOLOGIQUE A LA
SPECTROSCOPIE COLINEAIRE SUR JETS
ACCELERES DE SODIUM

SOUTENUE LE 10 Juillet 1984 DEVANT LA COMMISSION D'EXAMEN

MM.

Pierre JACQUINOT
Jacques BAUCHE
Hong Tuan DUONG
Sylvain LIBERMAN
Boualem SANSAL
Henry STROKE
Catherine THIBAUT
Jean-Louis VIALLE

Président

III - <u>DISPOSITIF EXPERIMENTAL</u>	55
A - Les enceintes - Le vide.	57
B - La chambre four	60
1. Le four	60
2. L'ioniseur	61
3. Extraction et déflexion des ions	63
4. Alignement du faisceau d'ions avec la lumière	65
C - La chambre de neutralisation	67
1. Cellule d'échange de charges	67
2. Dispositif de balayage de la vitesse des ions	73
D - La chambre d'interaction avec la lumière	75
1. Détection de la fluorescence et minimisation de la lumière parasite	75
2. Déflexion des ions résiduels	76
3. Mesure de l'intensité du jet atomique	76
E - Optique d'entrée du faisceau four	78
F - Alignement des faisceaux lumineux et atomique. Analyseur de faisceaux	79
G - Les lasers et le contrôle de leur fréquence d'émission	82
1. Les lasers	82
2. Le sigmamètre	83
H - Efficacité de la neutralisation	86
IV - <u>DETECTION DE LA FLUORESCENCE - EXCITATION</u> <u>PAR UN LASER</u>	93
A - Transitions étudiées	93
B - Principe de l'expérience	96
C - Enregistrements à faible puissance laser	99
1. Structure hyperfine de la raie D_1	99
2. Structure hyperfine de la raie D_2	102
D - Effets de l'augmentation de la puissance laser	104
1. Modèle de l'atome à deux niveaux	106
a) Système fermé	106
b) Système ouvert	110

2. Enregistrement des raies D_1 et D_2	114
a) Composantes de la raie D_1	114
b) Composantes de la raie D_2	120
E - Conclusion	122
V - <u>DETECTION DE LA FLUORESCENCE - EXCITATION</u>	
<u>PAR DEUX LASERS</u>	123
A - Principe de la méthode	124
B - Résultats expérimentaux	127
C - Amplitude et largeurs des résonances	130
1. Composantes négatives	132
2. Composantes positives	141
3. Conclusion	144
D - Gain en résolution des signaux	145
E - Une expérience à deux lasers réalisée "en ligne" au C.E.R.N.	147
F - Conclusion	151
VI - <u>APPLICATION à LA MESURE DE SPINS ET DE MOMENTS</u> <u>MAGNETIQUES NUCLEAIRES EN SPECTROSCOPIE</u> <u>COLINEAIRE</u>	153
A - Introduction	153
B - Niveaux d'énergie de l'état fondamental dans un champ magnétique	156
C - Description du dispositif expérimental	159
D - Expérience réalisée en champ magnétique statique ..	164
1. Principe de l'expérience	164
2. Résultats expérimentaux	167
3. Interprétation théorique des signaux observés ...	171
a) Principe du calcul	171
b) Signal de fluorescence	175
c) Expressions théoriques des signaux observés pour les différentes composantes de la raie D_1	177
4. Comparaison des résultats théoriques et expérimentaux	183

b) Effet de volume	283
c) Séparation des deux effets	284
III - <u>PRINCIPE DE L'EXPERIENCE ET DISPOSITIF</u>	
<u>EXPERIMENTAL</u>	286
A - Principe expérimental	287
B - Dispositif	289
C - Procédure expérimentale	292
IV - <u>MESURES SPECTROSCOPIQUES</u>	297
A - Structure hyperfine de la raie D_1	298
a) Isotopes ^{39}K et ^{41}K	298
b) Isotope ^{40}K	301
B - Structure hyperfine de la raie D_2	303
a) Isotopes ^{39}K et ^{41}K	303
b) Isotope ^{40}K	306
V - <u>CONCLUSION</u>	309
<u>3ème Partie : DETECTION DES RESONANCES OPTIQUES PAR</u>	
<u>POMPAGE OPTIQUE ET SELECTION MAGNETIQUE à</u>	
<u>L'AIDE D'UN CHAMP MAGNETIQUE INHOMOGENE :</u>	
<u>APPLICATION à L'ETUDE EN LIGNE DES</u>	
<u>TRANSITIONS OPTIQUES DU FRANCIUM</u>	311
I - <u>INTRODUCTION</u>	313
II - <u>RAPPELS SUR LE PRINCIPE DE LA METHODE</u>	318
A - Transitions étudiées	318
B - Déflexion des atomes dans un champ magnétique	
inhomogène	320
C - Principe de la détection de la résonance optique par	
pompage optique suivi d'une déviation magnétique ..	322

D - Validité de l'approximation en champ fort	327
III - <u>DISPOSITIF EXPERIMENTAL</u>	329
A - Production du jet atomique de francium	331
B - Le jet atomique. Région d'interaction avec la lumière	331
C - L'aimant hexapolaire	335
D - Le spectromètre de masse	335
E - Le détecteur	336
F - Acquisition des signaux	336
G - Le système laser	337
1. Principe du fonctionnement en modes bloqués	339
2. Le laser pompe	344
3. Le laser à colorant	348
IV - <u>DETERMINATION DE LA RAIE D_1 DU FRANCIUM</u> ..	357
V - <u>CONCLUSION</u>	361
<u>CONCLUSION GENERALE</u>	362
<u>BIBLIOGRAPHIE</u>	365
<u>Annexes</u> : Article I	
Article II	
Article III	

INTRODUCTION GENERALE

Le travail qui est décrit dans ce mémoire se place dans le cadre très général de la spectroscopie par jets atomiques interagissant avec un ou plusieurs faisceaux lasers.

Les structures atomiques qui sont masquées par l'élargissement Döppler dans une observation classique, peuvent néanmoins être résolues en utilisant un jet atomique se propageant dans une enceinte sous vide. La largeur Döppler résiduelle, due à la divergence du jet atomique, peut être ramenée à une valeur très faible, généralement inférieure à la largeur naturelle des raies étudiées. Outre le gain en résolution, l'utilisation d'un jet atomique de préférence à une vapeur, présente l'avantage de s'affranchir des effets dus aux parois, avantage non négligeable lorsqu'on veut étudier des éléments présentant une réactivité chimique importante, comme le Francium par exemple. De plus, on élimine par cette technique l'effet des collisions, ce qui permet d'observer des atomes libres.

En illuminant à angle droit un jet atomique thermique convenablement collimaté à l'aide d'un rayonnement laser, il devient possible de supprimer presque totalement l'effet Döppler et de réaliser alors des expériences de spectroscopie à haute résolution. Les méthodes spectroscopiques utilisant des jets atomiques thermiques croisés avec un ou plusieurs faisceaux lasers se sont véritablement développées avec l'apparition des lasers à longueur d'onde variable et plus précisément des lasers à colorant. Elles sont aujourd'hui très répandues.

D'apparition plus récente, la spectroscopie sur jets rapides excités colinéairement par des faisceaux lasers s'est révélée un outil efficace dans l'étude de certains ions possédant des transitions optiques dans le domaine de fonctionnement des lasers à colorant. La possibilité de transformer les jets d'ions accélérés en jets d'atomes rapides après neutralisation par échange de charges en vol a élargi le domaine d'application de cette nouvelle méthode [1]. Des résultats prometteurs ont été déjà obtenus dans l'étude des transitions atomiques de quelques éléments [2,3,4]. La spectroscopie colinéaire suscite actuellement un intérêt particulier en raison principalement de son adaptation parfaite à l'étude en ligne d'isotopes produits par les séparateurs isotopiques placés derrière les accélérateurs de particules.

La détection de l'interaction entre les atomes du jet et le rayonnement excitateur peut être effectuée sur les photons émis ou absorbés par les atomes ou bien sur les atomes du jet eux-mêmes (détection non optique). L'étude systématique de ces méthodes de détection se poursuit activement depuis une dizaine d'années. Notre travail entre dans le cadre de ces études méthodologiques. Son but principal est de déterminer les méthodes les plus sensibles pour faire des mesures de spectroscopie à très haute résolution sur de longues séquences d'isotopes produits en ligne avec des accélérateurs.

La détection de la fluorescence du jet est la plus sensible des méthodes optiques lorsque le pompage optique ne limite pas le nombre de photons que chaque atome peut émettre. Dans ce cas, seuls les problèmes de lumière parasite et du bruit de détecteur fixent une limite à la sensibilité. Dans le cas des alcalins, par exemple, où il existe un pompage optique à cause de la structure hyperfine de l'état fondamental, d'autres méthodes de détections optiques et non optiques doivent être recherchées.

Pour les isotopes d'atomes alcalins, une méthode fonctionnant sur jets thermiques et utilisant le pompage optique suivi d'une déflexion magnétique des atomes par un champ inhomogène s'est révélée très sensible. Cette méthode, analogue dans le domaine optique à la méthode de résonance magnétique de Rabi, a été appliquée avec succès à l'étude des isotopes radioactifs des éléments alcalins. Les résultats obtenus par cette technique sur l'étude des isotopes de Francium, au cours d'expériences réalisées au C.E.R.N., à Genève, sont décrits dans la dernière partie de cet exposé.

Nous décrivons aussi une expérience de spectroscopie plus classique menée sur un jet thermique de Potassium naturel. Cette expérience a été réalisée au Laboratoire Aimé-Cotton. La technique utilisée consiste à détecter la fluorescence du jet de Potassium lorsque celui-ci est excité par un faisceau laser modulé à haute fréquence. Cette méthode nous a permis d'atteindre une précision de l'ordre de quelques dixièmes de MHz, par une technique relativement simple dans sa mise en oeuvre (partie II).

Les méthodes spectroscopiques précédentes ont permis de mesurer les structures hyperfines et les déplacements isotopiques de longues séries d'isotopes. Néanmoins, des études analogues sur d'autres éléments que les alcalins étaient à l'évidence nécessaires pour mieux comprendre les propriétés nucléaires des atomes, qui sont à l'origine des effets spectroscopiques mesurés. En particulier, les éléments à nombre pair de protons offrent l'avantage d'une interprétation nucléaire théorique plus aisée. Malheureusement, les méthodes utilisées pour l'étude des alcalins ne sont pas généralisables aux autres éléments.

Les isotopes radioactifs étant fournis par le séparateur de masse sous forme d'un faisceau d'ions accélérés, donc monocinétiques, c'est la technique de spectroscopie colinéaire qui nous a paru la mieux appropriée pour la suite de nos expériences. La recherche de la mise au point de mé-

thodes de détection très sensibles, adaptées à cette technique particulière, a constitué la partie la plus importante de notre travail. Ici encore, la détection de la fluorescence est limitée par le pompage optique. Nous avons cherché par conséquent à mettre au point d'autres méthodes de détection des résonances optiques. L'une d'entre elles, utilisant deux lasers comme sources de lumière d'excitation, tire parti du pompage optique pour réaliser cette détection. L'autre méthode combine une excitation optique des atomes vers un niveau de Rydberg avec leur ionisation par un champ électrique statique. La détection des résonances optiques a donc lieu sur les atomes excités, eux-mêmes. Pour déduire les propriétés nucléaires à partir des grandeurs spectroscopiques mesurées, il est nécessaire de connaître la valeur du spin nucléaire I . Deux méthodes différentes ont été mises au point dans ce but. Elles font l'objet de la première partie de l'exposé qui décrit aussi les méthodes optiques et non optiques utilisées pour détecter les transitions atomiques.

Certains des résultats obtenus au cours de ces expériences ont été publiés, les articles correspondants sont donnés sous forme d'annexes à la fin de l'exposé (Annexes I, II, et III).

Partie I

SPECTROSCOPIE SUR JET D'ATOMES RAPIDES
EXCITES PAR DES LASERS COLINEAIRES.
DETECTIONS OPTIQUES ET NON-OPTIQUES
DES RESONANCES

I - INTRODUCTION

Le but ultime des expériences décrites dans cette partie est d'obtenir, par des méthodes optiques, des informations sur les noyaux d'une longue série d'isotopes d'un même élément. L'étude à très haute résolution des raies de résonance permet de mesurer la structure hyperfine du niveau fondamental et des premiers niveaux excités pour chaque isotope ainsi que les déplacements isotopiques entre les raies de deux isotopes différents. En outre, ce type d'expériences donne en général accès aux spins nucléaires des isotopes étudiés.

Différents paramètres nucléaires peuvent être déduits de ces mesures :

- le moment magnétique nucléaire est relié à la structure hyperfine ;
- le moment quadropolaire électrique peut être atteint à partir de l'étude de la structure hyperfine de niveaux de moment angulaire $J \gg 1$;
- la variation du rayon carré moyen de la charge du noyau peut être déduite à partir du déplacement isotopique.

L'intérêt d'étudier de très longues séries d'isotopes est double :

en effet, on s'attend à ce que les isotopes très exotiques, loin de la vallée des noyaux stables, présentent des déformations nucléaires importantes qui devraient entraîner des variations anormales du rayon carré moyen des charges du noyau de ces isotopes. D'autre part, dans le déplacement isotopique, seule la partie due à l'effet de volume est intéressante pour l'étude de la structure du noyau. Il est donc nécessaire de soustraire du déplacement isotopique total la partie due à l'effet de masse ; malheureusement, à cause de l'effet de masse spécifique, l'effet de masse n'est pas calculable de façon exacte ; en revanche, sa dépendance en fonction de la masse des isotopes est connue, de sorte qu'il peut être calculé en fonction d'un seul paramètre ajustable pour tous les isotopes de la série isotopique étudiée. On a donc intérêt à rendre cette série la plus longue possible.

Un certain nombre de méthodes expérimentales de spectroscopie sub-Doppler, jointes à l'utilisation des lasers, ont été mises au point. C'est grâce à elles que l'on dispose aujourd'hui d'une connaissance à peu près complète des paramètres nucléaires pour les noyaux stables ou de longue durée de vie.

L'extension des recherches en direction des isotopes exotiques, éloignés de la vallée de stabilité, nécessite une méthode expérimentale capable de surmonter deux difficultés incontournables car liées au caractère exotique des isotopes considérés :

- Les isotopes radioactifs sont produits en bombardant une cible appropriée avec un faisceau de protons d'énergie convenable fourni par un accélérateur. La production en très faible quantité de certains échantillons radioactifs nécessite la mise en oeuvre d'une méthode de détection des résonances optiques extrêmement sensible.
- Les durées de vie très courtes des isotopes étudiés excluent toute longue procédure de préparation de l'échantillon radioactif et rendent obligatoire le montage du dispositif expérimental en ligne derrière le séparateur d'isotopes.

La méthode de spectroscopie laser colinéaire se prête admirablement bien à ce type d'étude. Utilisant soit directement le faisceau d'ions monoisotopiques accélérés émergeant du séparateur de masse, soit un faisceau d'atomes obtenus par neutralisation "en vol" du faisceau d'ions [1], la spectroscopie colinéaire constitue une solution simple et élégante au problème posé par la manipulation d'échantillons radioactifs. Elle a déjà donné d'excellents résultats dans l'étude d'alcalins tels que le Rubidium et le Césium [2, 3, 4] ou d'alcalino-terreux comme le Barium [5]; elle s'est révélée enfin être une technique souple, universellement applicable dans son principe.

Les lasers à colorant continus monomodes accordables dont on dispose actuellement fonctionnent principalement dans le domaine des longueurs d'ondes visibles alors que les raies de résonance ioniques sont en général situées dans l'ultraviolet; il est donc nécessaire dans la plupart des cas de neutraliser le jet d'ions fourni par le séparateur de masse. Dans une expérience de spectroscopie colinéaire sur jet atomique rapide, les ions initialement produits sont neutralisés de manière très efficace dans une cellule d'échange de charges [1], et ceci sans changement notable des propriétés cinématiques du jet. La réduction de la largeur de distribution des vitesses résultant de l'accélération subie par les ions, est conservée après leur neutralisation; par conséquent, une excitation colinéaire du jet d'atomes (ou d'ions) amène, de façon simultanée, la plupart des atomes en résonance avec la lumière laser. Les résonances optiques sont détectées par observation de la fluorescence. La sensibilité de la méthode est maximale lorsque le nombre de photons qu'un atome peut émettre n'est pas limité par le pompage optique. C'est ainsi que la raie de résonance $^1S_0 - ^1P_1$ du Barium I, dans le cas des isotopes pairs, a pu être observée dans des conditions expérimentales où le flux atomique était de quelques 10^4 particules/seconde [6].

Lorsqu'il existe une structure hyperfine dans l'état fondamental, les niveaux résonnants sont vidés au bout de quelques cycles de pompage, ce qui limite le signal de fluorescence à quelques photons par atome. C'est

dans le but d'augmenter la sensibilité de la méthode de détection de la fluorescence que nous avons cherché à tirer parti du pompage optique plutôt que d'en subir les inconvénients. Pour cela, nous avons testé expérimentalement la méthode proposée par Vialle et Duong [7] , qui consiste à détecter les résonances optiques à l'aide d'un second faisceau laser colinéaire. Notre démarche étant surtout méthodologique, nous avons exploré les divers aspects expérimentaux sur un jet de sodium neutre rapide afin de tester les possibilités de la méthode et les différents modes de détection optique ou non optique qui peuvent lui être associés.

Le principe de fonctionnement d'une expérience de spectroscopie colinéaire est exposé au Chapitre II, avec la description des étapes successives :

- production du jet d'ions ;
- accélération du jet ;
- neutralisation ;
- excitation colinéaire et détection de la fluorescence.

Nous présenterons ensuite en détail le dispositif expérimental dans le Chapitre III ; les largeurs théoriques des raies de résonance seront discutées et comparées aux largeurs de raies expérimentales dans le Chapitre IV. Dans le Chapitre V, on trouvera la description et les résultats expérimentaux de la méthode de détection du pompage optique utilisant deux lasers. Au Chapitre VI, on décrira enfin deux méthodes de mesure de spins nucléaires en spectroscopie colinéaire : l'une est la méthode de résonance magnétique classique [8] , l'autre est basée sur l'observation de la précession de Larmor des moments magnétiques atomiques autour d'un champ magnétique statique. Puis, nous discuterons les avantages des deux méthodes de détermination de spins nucléaires proposées par rapport aux méthodes existant déjà. Dans un dernier chapitre, enfin, nous parlerons des processus collisionnels qui se déroulent à l'intérieur de la cellule de neutralisation et pour lesquels la spectroscopie colinéaire constitue un outil d'investigation nouveau.

Chapitre II

PRINCIPE DE LA SPECTROSCOPIE COLINEAIREA - Introduction.

Le schéma de principe d'une expérience de spectroscopie colinéaire est représenté en Figure 1 . Elle consiste à utiliser un jet d'ions ou un jet d'atomes accélérés (dans ce dernier cas, les atomes sont obtenus après neutralisation des ions par échange de charges avec une vapeur métallique) et à l'exciter par un faisceau laser de direction colinéaire à celle des particules. L'accélération, produite par une différence de potentiel de plusieurs kilovolts, provoque une réduction de la distribution initiale des vitesses longitudinales. La détection des résonances optiques se fait par observation de la fluorescence du jet (en aval de la cellule de neutralisation dans le cas d'un jet d'atomes). L'élargissement Döppler résultant est du même ordre de grandeur que les largeurs naturelles des raies de résonance.

Ce schéma d'excitation fut proposé en 1976 par Kaufman [1] , qui fit une analyse complète des possibilités de la méthode dans des expériences de spectroscopie optique ou de spectroscopie de masse, en

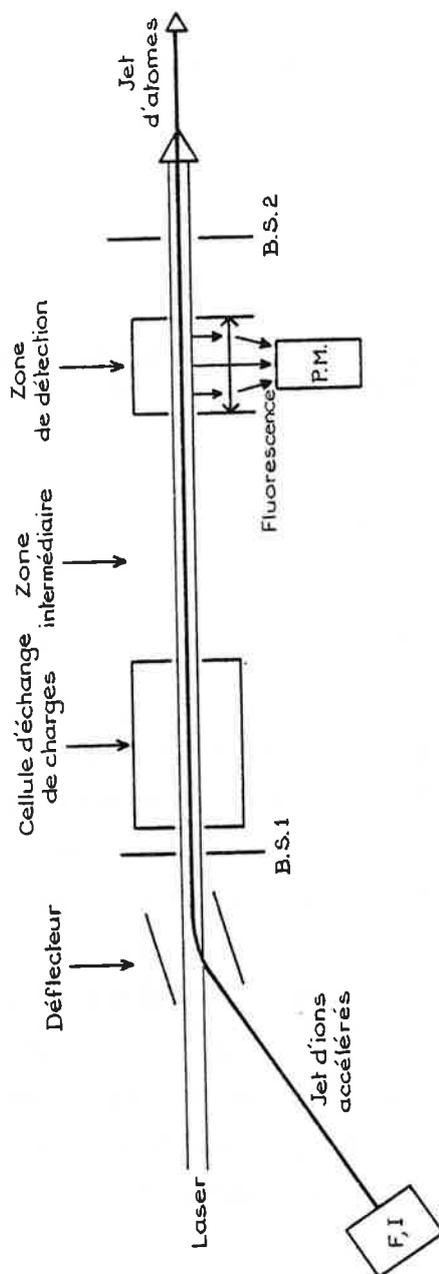


Figure 1

Schéma de principe d'une expérience de spectroscopie colinéaire.

mettant l'accent sur son intérêt pour l'étude des isotopes de courte durée de vie. Depuis, de nombreux travaux expérimentaux ont été réalisés selon cette technique ; ces travaux ont confirmé la sensibilité de la méthode et l'universalité de son domaine d'application. Les premières expériences réalisées en spectroscopie colinéaire ont eu pour objet l'étude de molécules ioniques [9] ou d'ions portés dans des états excités métastables [10] , molécules ou ions métastables présentant la particularité avantageuse d'être excitables optiquement avec les sources laser dont on dispose à l'heure actuelle (domaine visible, proche U.V.). Ces états métastables sont malheureusement faiblement peuplés et leur production est difficilement contrôlable, ce qui nuit considérablement à la sensibilité de ce type d'expérience. En revanche, le processus d'échange de charges peut peupler de façon efficace des états atomiques métastables en choisissant la réaction de transfert de charges adéquate. Ce phénomène a été clairement mis en évidence dans les expériences préliminaires de spectroscopie colinéaire utilisant diverses combinaisons d'éléments alcalins pour le jet d'ions et la vapeur cible [2, 11] . Ce mécanisme a été aussi très utilisé pour la production d'atomes d'hydrogène dans l'état $2s$ ou d'ions de gaz rares métastables [10, 12, 13] . Récemment encore, des études exploratoires sur la raie Balmer α ont été entreprises par spectroscopie colinéaire [14] . D'une manière générale, la technique d'échange de charges donne accès à l'étude spectroscopique d'éléments qui, dans leur forme ionique, ont des raies de résonance situées dans l'ultraviolet, et sont donc hors de portée des lasers à colorant accordables. Dans d'autres cas, elle élargit le choix des transitions de fréquence accessible et peut permettre d'obtenir un complément d'information. Ce dernier point, par exemple, a été illustré par Neugart et al. [15] pour la détermination des propriétés nucléaires des isotopes du radium, pour lesquels ils ont étudié aussi bien des transitions atomiques que des transitions du spectre ionique du radium. Il faut signaler aussi les expériences entreprises par Winter et Gaillard [16] sur des jets d'ions excités colinéairement et la technique d'absorption saturée en "vol" qu'ils ont développée à cette occasion.

B - Accélération du jet d'ions :

"Compression de la distribution des vitesses".

La spectroscopie colinéaire tire parti d'une propriété extrêmement simple des jets de particules accélérées ; ce phénomène (appelé "velocity bunching" en anglais) peut être défini comme la compression de la distribution des vitesses à l'intérieur du jet sous l'effet de l'accélération.

Considérons un jet d'ions dont la dispersion en vitesses, dans une certaine direction Oz, est Δv_{th} , autour de la vitesse thermique moyenne $v_{th} = \left(\frac{2kT}{m}\right)^{1/2}$. Quand on établit une différence de potentiel U dans la même direction Oz, les ions vont atteindre la vitesse $v_a = \left(\frac{2eU}{m}\right)^{1/2}$ avec une dispersion Δv_a (Fig. 2). L'accélération ne modifiera pas la dispersion d'énergie des ions puisque chacun verra son énergie augmentée de la même quantité d'énergie cinétique eU. Si la dispersion d'énergie d'origine thermique est égale à $\Delta \left(\frac{1}{2} m v_{th}^2\right)$ avant l'accélération, elle restera égale à la dispersion d'énergie finale $\Delta \left(\frac{1}{2} m v_a^2\right)$. On a donc :

$$v_{th} \cdot \Delta v_{th} = v_a \cdot \Delta v_a$$

Ce résultat montre que la dispersion des vitesses est inversement proportionnelle à la valeur moyenne des vitesses. Si la température absolue des ions est T, et leur charge électrique e, l'accélération produira une réduction de la dispersion des vitesses d'un facteur R

$$R = \frac{\Delta v_a}{\Delta v_{th}} = \frac{v_{th}}{v_a} = \sqrt{\frac{kT}{eU}}$$

Ordre de grandeur.

Dans le cas d'ions de ^{23}Na , émis par un four à la température $T = 1500^\circ\text{K}$, accélérés par une différence de potentiel $U = 5000 \text{ V}$, on trouve que :

$$v_{th} = 1041,7 \text{ m/s} \quad \text{et} \quad v_a = 2,05 \cdot 10^5 \text{ m/s}$$

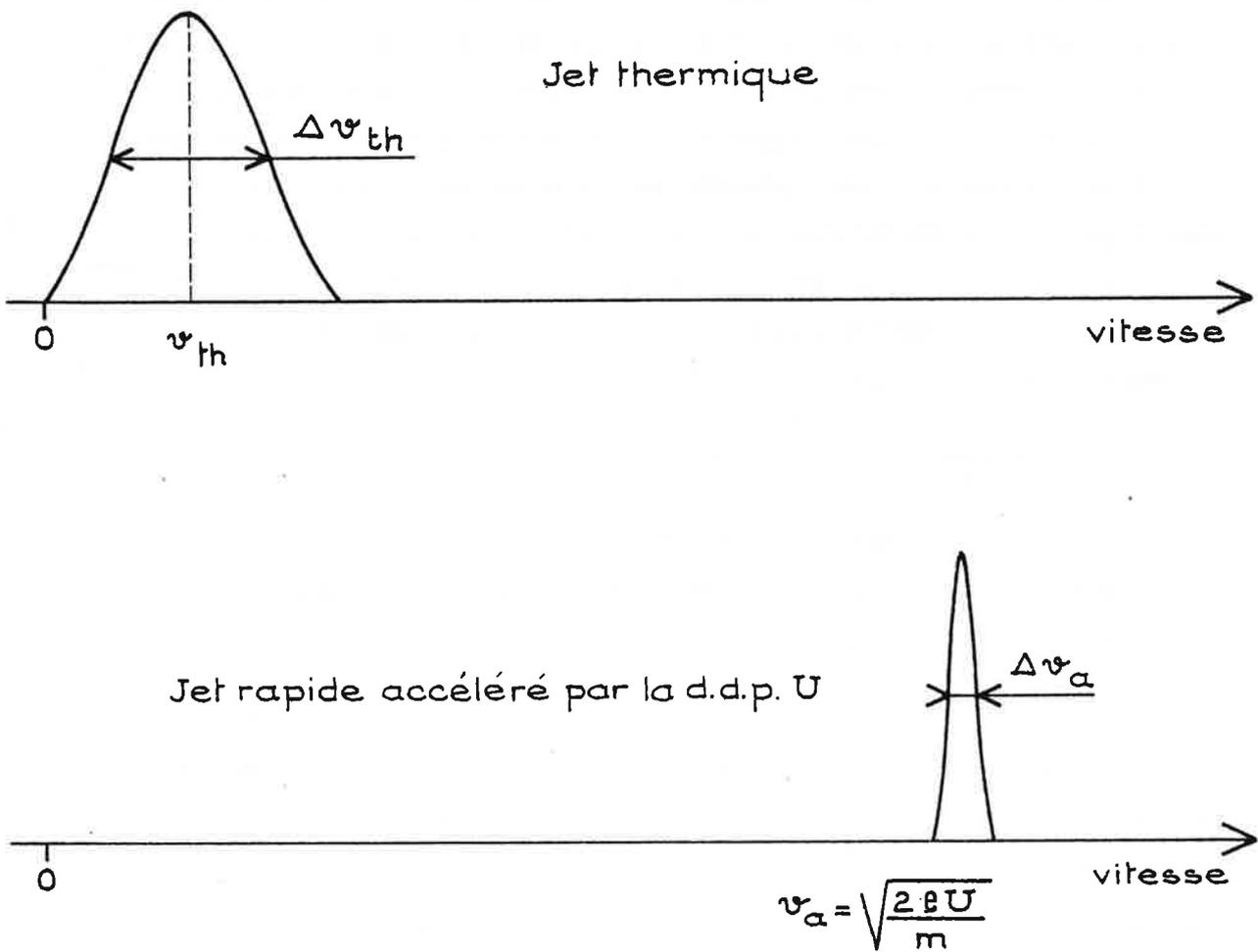


Figure 2

Principe du "velocity bunching"

Si on estime que Δv_{th} est du même ordre de grandeur que v_{th} , alors :

$$\Delta v_a = R v_{th} \sim 5 \text{ m/s} .$$

La distribution des vitesses, dans une direction perpendiculaire à la direction de l'accélération, n'est pas modifiée par celle-ci, bien évidemment. On peut expliquer, de manière intuitive, le phénomène de "velocity bunching" en remarquant que les ions qui, au départ, ont une vitesse initiale importante passeront moins de temps dans le champ électrique et gagneront ainsi moins de vitesse que les ions initialement moins rapides. On obtient ainsi un jet d'ions rapides quasi-monocinétique. Il est donc possible d'entreprendre des expériences de spectroscopie sub-Döppler en géométrie colinéaire. En effet, si le jet rapide est excité par un faisceau laser monochromatique parallèle au jet, et si on néglige toutes les autres causes d'élargissement, on peut espérer des largeurs de raies Döppler de l'ordre de :

$$\Delta v \simeq v_0 \cdot \frac{\Delta v_a}{c} = v_0 \cdot \frac{v_{th}}{c} \cdot R$$

où v_0 est la fréquence de résonance.

Pour les atomes de ^{23}Na , dans les mêmes conditions de température et d'énergie du jet accéléré :

$$\Delta v \simeq 8,3 \text{ MHz} .$$

L'élargissement Döppler est du même ordre de grandeur que la largeur naturelle des raies d'absorption du sodium (10 MHz).

Remarques :

a) Comme un jet accéléré sous une tension de 5 kV est environ 200 fois plus rapide qu'un jet thermique, l'effet Döppler résultant d'une excitation par un faisceau laser perpendiculaire au jet sera 200 fois plus important qu'il ne le serait dans le cas d'un jet thermique de même ouverture angulaire et excité suivant la même géométrie. Par exemple, pour une divergence de 5 milliradians, ce qui est l'ordre de grandeur habituel de l'ouverture des faisceaux d'ions réalisés en laboratoire, dans le cas du jet d'ions de sodium décrit plus haut, l'élargissement

Doppler des raies de résonance en faisceaux croisés v est de l'ordre de :

$$\Delta\nu = \nu \cdot \frac{v_a}{c} \theta = 1,7 \text{ GHz} .$$

b) L'accélération (et le phénomène de compression de la distribution des vitesses qui en résulte) améliore la sensibilité puisqu'elle permet d'amener simultanément tous les atomes en résonance avec la lumière, au lieu d'utiliser uniquement la partie résonnante de la largeur Doppler du spectre. On peut se rendre compte aisément de cet avantage en comparant la spectroscopie colinéaire laser avec une autre technique standard de spectroscopie laser qui utilise un jet thermique collimaté éclairé à angle droit. Supposons que le signal de fluorescence émis par chaque particule soit proportionnel au rapport ℓ/v , où (ℓ) est la longueur de la zone d'interaction des atomes avec la lumière, et (v) la vitesse moyenne d'une particule du jet. Des valeurs typiques pour ℓ sont, respectivement, 100 mm en géométrie colinéaire et 1 mm en géométrie croisée. Pour obtenir le même signal de fluorescence par les deux méthodes expérimentales, il faudrait donner au jet accéléré une vitesse v_{acc} telle que :

$$v_{acc} \approx 100 v_{thermique} .$$

En revanche, la résolution sera 100 fois meilleure dans la méthode qui utilise la géométrie colinéaire puisque la dispersion des vitesses, dans le jet accéléré, sera réduite du même facteur. Il est certes possible d'obtenir la même résolution avec le jet thermique, mais, pour cela, il est nécessaire de réaliser une collimation de l'ordre de 10 milliradians ; dans ces conditions, si on admet que le flux atomique a une dépendance angulaire en $\cos \theta$, il résultera de la collimation qu'on n'utilise que 1/10.000ième du flux total des particules disponibles. La haute résolution ne pourra donc être obtenue qu'au détriment de la sensibilité de la méthode.

Décalage des raies dû à l'effet Döppler.

Les raies de résonance sont déplacées par l'effet Döppler d'une quantité proportionnelle à la vitesse acquise par les ions :

$$\Delta\nu_D = \nu_0 \frac{v_a}{c}$$

ν_0 est la fréquence de résonance au repos.

Ce déplacement peut être important ; dans le cas du jet de sodium décrit précédemment, $\Delta\nu$ est égal à 347,4 Gigahertz pour la longueur d'onde $\lambda = 5890 \text{ \AA}$. Comme le décalage Döppler dépend de la masse de l'atome, on peut déduire de sa mesure les masses atomiques d'isotopes très exotiques, loin de la vallée de stabilité, en comparant les raies de résonance appartenant à ces isotopes avec une raie témoin d'un isotope de masse connue. Cette méthode de spectrométrie de masse a une résolution théorique de l'ordre de :

$$\frac{M}{\Delta M} = \frac{\nu}{\Delta\nu} \frac{v_a}{2c}$$

Dans les conditions expérimentales précédentes, et si l'on suppose qu'on sépare convenablement deux raies distantes d'une trentaine de MHz (comme on le verra plus loin, cette supposition n'est pas déraisonnable compte tenu des largeurs des raies de résonance obtenues), la résolution est environ égale à $5 \cdot 10^3$. Ceci suppose, bien sûr, que l'on connaisse le déplacement isotopique entre les raies à mieux que 30 MHz.

La technique de spectroscopie colinéaire sur jet rapide présente une grande souplesse pour obtenir l'accord entre la fréquence du laser et la fréquence atomique.

Expérimentalement, il existe deux manières de procéder ; on peut accorder la fréquence du laser excitateur sur la raie de l'isotope choisi en balayant la fréquence du laser et en tenant compte du décalage Döppler fixe créé par l'accélération ; on peut aussi maintenir la fréquence du laser fixe et faire varier continûment la vitesse des

atomes par l'intermédiaire de la tension accélératrice jusqu'à balayer toute la structure de la raie.

Dans les expériences qui seront décrites ici, c'est la première méthode qui a été choisie pour des raisons qui seront explicitées plus loin. Il faut faire remarquer ici que cette souplesse dans la technique de balayage nécessite en contrepartie, quelle que soit la méthode de balayage choisie (laser ou vitesse) une excellente connaissance de la tension d'accélération U à chaque instant. Par exemple, dans le cas d'une expérience en ligne avec le séparateur isotopique d'Isolde, au C.E.R.N., la tension d'accélération des ions est habituellement de l'ordre de $U = 60 \text{ kV}$. La stabilité de cette tension doit être assurée de façon à éviter que les déviations soient supérieures à un demi-volt pendant la durée d'un enregistrement, ce qui représente une stabilité relative meilleure que 10^{-5} sur une tension de l'ordre de plusieurs dizaines de kilovolts [6].

Conclusion.

On a vu que le phénomène de regroupement des vitesses consécutif à l'accélération des ions dans un champ électrique peut être avantageusement exploité pour produire des raies d'absorption fines dans une configuration où la lumière laser et le jet d'ions sont colinéaires. Les largeurs de raies Döppler sont du même ordre de grandeur que les largeurs naturelles, ce qui signifie que tous les atomes à l'intérieur du jet interagissent avec une lumière laser résonnante et qu'ils contribuent tous au signal de fluorescence.

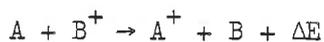
La résolution qu'on peut attendre d'une telle méthode expérimentale est certes comparable à celle qu'on peut atteindre avec un jet thermique excité orthogonalement. Son avantage réside dans le fait que cette bonne résolution n'est pas payée en retour par une perte de sensibilité, comme c'est le cas des jets thermiques où un accroissement de la résolution ne s'obtient qu'au prix d'une forte collimation du jet

et donc d'une baisse du signal. Dans une expérience sur jet rapide, tous les ions produits sont directement utilisables.

C - Neutralisation du jet d'ions.

Il existe dans la nature peu d'exemples d'éléments pour lesquels il est possible d'utiliser directement le faisceau d'ions, dans une expérience de spectroscopie optique où la source lumineuse est un laser à colorant continu et accordable. Actuellement, ces lasers couvrent tout le spectre visible et le proche infrarouge, alors que les raies de résonance ioniques se situent pour la plupart dans le spectre ultraviolet. La conversion du jet d'ions en un jet d'atomes neutres se présente donc souvent comme une nécessité pour l'étude de la majeure partie des éléments.

La neutralisation est réalisée de façon très efficace au moyen d'un processus collisionnel avec échange de charges entre le jet d'ions et une vapeur atomique suivant le schéma :

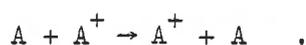


B fait référence aux particules formant le jet accéléré et A représente un atome neutre de la vapeur cible. Les vapeurs cibles sont généralement des vapeurs alcalines : les alcalins ont la préférence à cause de la haute pression de vapeur de ces éléments à des températures relativement modérées et de la faiblesse de l'énergie de liaison de l'unique électron de valence, ce qui laisse prévoir une forte section efficace d'échange de charges comme on le verra plus loin.

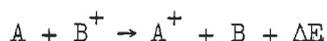
Dans les cas quasi-résonnants où le défaut d'énergie ΔE est négligeable, la section efficace de collision avec transfert de charge

est de l'ordre de 10^{-14} cm². Cette situation correspond à des dimensions des paramètres d'impact supérieures à celles des rayons atomiques. Il en résulte que l'impulsion transférée à l'atome cible par l'ion incident est négligeable et que la distribution dans l'espace des phases du jet rapide n'est pas élargie par la neutralisation. Les qualités de monocinéticité du jet rapide ne sont donc pas altérées.

On distinguera deux processus de neutralisation : le premier est symétrique, donc résonnant ($\Delta E=0$) :



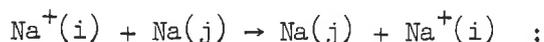
l'autre est asymétrique et, en général, non résonnant ($\Delta E \neq 0$) :



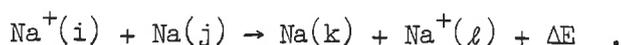
où ΔE est la différence entre les potentiels d'ionisation des éléments A et B. Plus généralement, l'échange de charge peut se produire aussi avec des changements d'états électroniques pour les deux partenaires, après la collision. Le défaut d'énergie ΔE reflète alors la perte d'énergie interne de l'ensemble des deux partenaires après la collision par rapport à la situation avant la collision.

1. Calcul de la section efficace d'échange de charges par collisions.

Le jet d'ions de sodium que nous avons utilisé est neutralisé dans une cellule renfermant une vapeur du même élément. La réaction de neutralisation peut se produire suivant deux processus ; l'un d'eux est résonnant, il laisse les deux partenaires de la collision dans leur état fondamental :



l'autre est non résonnant et se produit avec un changement des états électroniques et de l'énergie des partenaires :



a) Echange de charge résonnant.

Nous allons calculer la section efficace du processus résonnant en suivant le procédé de calcul a priori proposé par Rapp et Francis [17] pour des atomes appartenant à une classe de vitesses qui autorise l'approximation semi-classique du paramètre d'impact. Dans cette approximation, les atomes se déplacent sur des orbites rectilignes. La vitesse maximale est de l'ordre de 10^6 mètres/seconde ; la vitesse minimale dépend de la masse réduite de la molécule formée pendant la collision. Une analyse approximative a conduit Rapp et Francis à situer cette limite inférieure aux environs de $(10^3/\mu^{1/2})$ mètres/seconde où μ est la masse réduite exprimée en u.m.a. du couple d'atomes qui entrent en collision.

La section efficace de collision avec transfert de charge est calculée à partir de la relation :

$$\sigma(v) = 2\pi \int_0^{\infty} P(b,v) b db \quad (1)$$

où $P(b,v)$ est la probabilité de transfert de charge dans une collision se produisant à la vitesse v , avec un paramètre d'impact b . Les deux partenaires sont supposés former durant la collision un complexe identique à une molécule Na_2^+ où l'ion Na^+ est assimilé à une masse ponctuelle chargée positivement et l'atome de sodium Na à l'ensemble ion $Na^+ + e^-$. L'analyse de la collision est ramenée à l'étude d'un problème à un électron ; il en résulte que l'état non stationnaire qui caractérise la collision peut être décrit à l'aide de deux états stationnaires symétrique et antisymétrique, d'énergies E_s et E_a respectivement. Le résultat final s'écrit alors [18]

$$P(b,v) = \sin^2 \left\{ \int_{-\infty}^{+\infty} (E_a - E_s) \frac{dx}{2\hbar v} \right\} \quad (2)$$

Le calcul de la section efficace $\sigma(v)$ ne dépend donc que de la variation de la quantité $(E_a - E_s)$ le long de l'orbite collisionnelle, en fonction de la distance internucléaire R entre Na et Na^+ , qui est donnée par $R^2 = x^2 + b^2$. Cette quantité ne peut être calculée

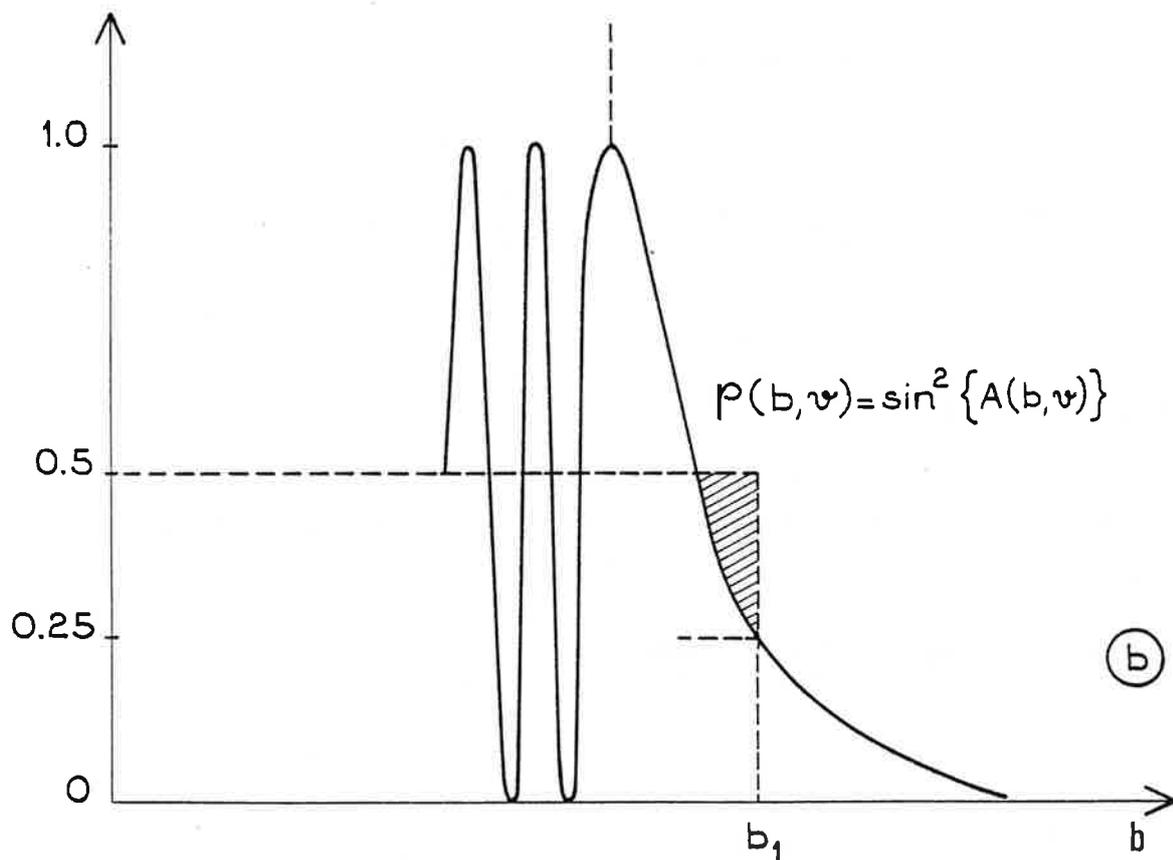
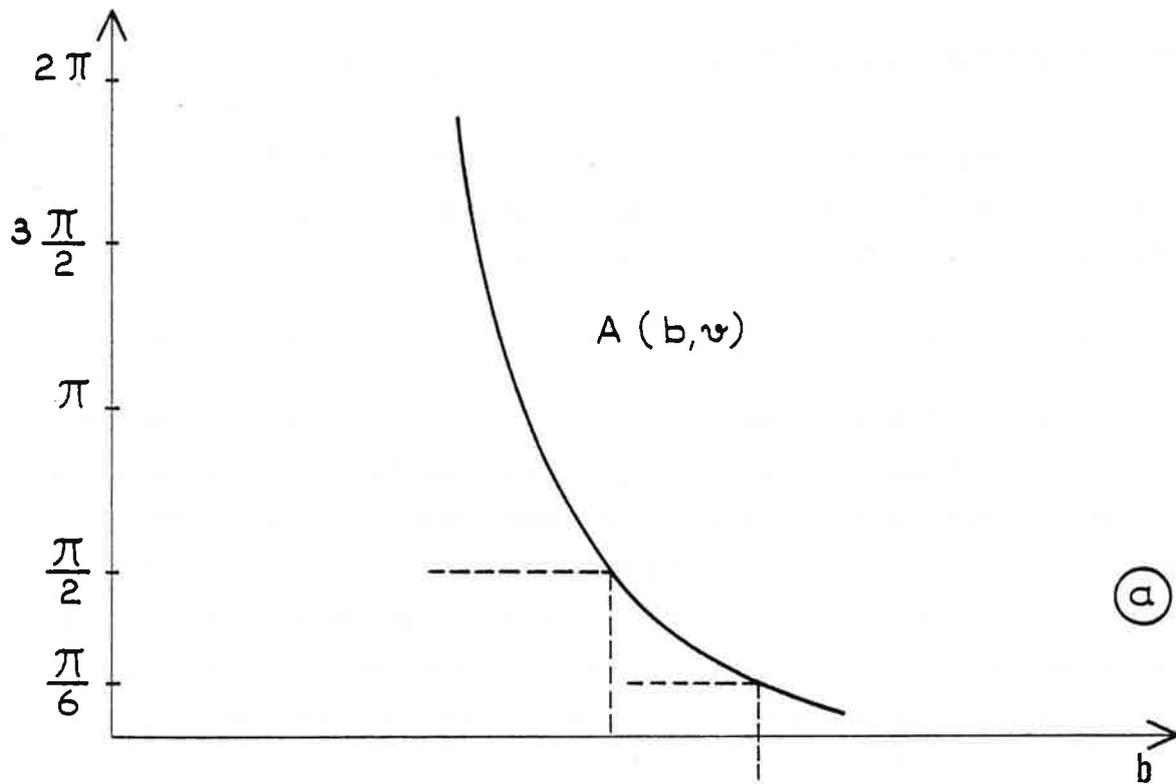


Figure 3 : Probabilité de transfert de charge $P(b, v)$ en fonction du paramètre d'impact b , pour une vitesse v de l'ion.

précisément que dans le cas de la molécule H_2^+ et, un peu moins précisément, dans le cas de la molécule He_2^+ . Dans le cas de molécules plus complexes, seuls les calculs approchés sont possibles. Rapp et Francis ont utilisé une approche semi-empirique dans laquelle la fonction d'onde décrivant $(Na^+ + e^-)$ peut s'écrire :

$$\Psi(r) = (\pi a_0^3)^{-1/2} (I/13,6)^{3/4} \exp \{-(I/13,6)^{1/2} r/a_0\} \quad (3)$$

où r est la distance entre Na^+ et l'électron, a_0 le rayon de Bohr et I le potentiel d'ionisation exprimé en électron-volt. Cette approche devient très grossière dès que le corps étudié n'est plus l'hydrogène et particulièrement lorsque l'électron externe n'est pas dans un état s . Néanmoins, elle a le mérite d'établir une certaine corrélation entre la dimension de l'orbitale et le potentiel d'ionisation et, comme on le verra plus loin, elle donne un ordre de grandeur correct pour le phénomène étudié. Pour $R/a_0 \gg 1$, on trouve, à l'aide de cette fonction d'onde :

$$E_a - E_s = 2I (R/a_0) \exp \{-(I/13,6)^{1/2} R/a_0\} \quad (4)$$

La probabilité de transfert de charge est alors donnée par :

$$P(b,v) = \sin^2 \left\{ \frac{21b^2}{a_0^2 \hbar v} \left(K_0(\gamma b/a_0) + \frac{K_1(\gamma b/a_0)}{\gamma b/a_0} \right) \right\} \quad (5)$$

où : K_0 et K_1 sont les fonctions de Bessel modifiées d'ordre 0 et 1, et : $\gamma = (I/13,6)^{1/2}$.

Avec l'approximation précédente que le paramètre d'impact est très supérieur aux dimensions atomiques, on aboutit à l'expression asymptotique pour $P(b,v)$:

$$P(b,v) = \sin^2 \left\{ \left(\frac{2\pi}{\gamma a_0} \right)^{1/2} \left(\frac{I}{\hbar v} \right) b^{3/2} \left(1 + \frac{a_0}{\gamma b} \right) \exp\left(-\frac{\gamma b}{a_0}\right) \right\} \quad (6)$$

La Figure 3b montre que la probabilité de transfert de charges $P(b,v) = \sin^2 \{A(b,v)\}$, pour une vitesse v fixée de l'ion, oscille entre 0 et 1 pour des valeurs faibles de b , et tombe à zéro lorsque le paramètre d'impact devient très grand. Dans le même esprit d'un

calcul approché dans le but de parvenir à une estimation plutôt qu'à une détermination rigoureuse de la section efficace de transfert de charges, on remplace la fonction oscillante $P(b,v)$ entre le point $b=0$ et le point $b=b_1$ par sa valeur moyenne $P_m = 0,5$, b_1 étant la valeur la plus grande du paramètre d'impact pour lequel on a : $P(b_1,v) = 0,25$ (voir la Figure 3.a). Le choix de ce dernier point est bien évidemment arbitraire ; en fait, comme on le voit sur la Figure cette approximation revient à remplacer "la queue" de la fonction $P(b,v)$ par la surface hachurée. La section efficace d'échange de charge s'écrit alors simplement en fonction de b_1 :

$$\sigma = \frac{1}{2} \pi b_1^2 \quad . \quad (7)$$

Le paramètre b_1 se détermine par l'intermédiaire de l'équation :

$$P(b_1,v) = \sin^2 \left\{ \left(\frac{2\pi}{\gamma a_0} \right)^{1/2} \left(\frac{I}{\pi v} \right) b^{3/2} \left(1 + \frac{a_0}{\gamma b} \right) e^{-\gamma b/a_0} \right\} \\ = 0,25 \quad . \quad (8)$$

Lorsque la plage de variation de la vitesse des ions est limitée, on peut remplacer b_1 dans l'équation (8) par sa valeur moyenne \bar{b}_1 dans tous les termes où il apparaît, exception faite du terme exponentiel dont la variation en fonction de b est très rapide. On aboutit alors à une relation simple entre σ et la vitesse v de la forme :

$$\sigma^{1/2}(v) = A - B \log v \quad (9)$$

relation qui montre que la section efficace d'échange de charges décroît uniformément avec la vitesse relative des particules entrant en collision.

Cette expression de σ ne reflète correctement la réalité que si l'on s'intéresse à un domaine restreint de variation de v autour d'une vitesse moyenne donnée ; lorsque v varie de façon importante, b_1 varie aussi de façon significative, et l'approximation qui a été faite pour obtenir la relation (9) n'est plus valable.

En conclusion, il est possible en suivant la méthode proposée par Rapp et Francis de calculer l'ordre de grandeur de la section efficace

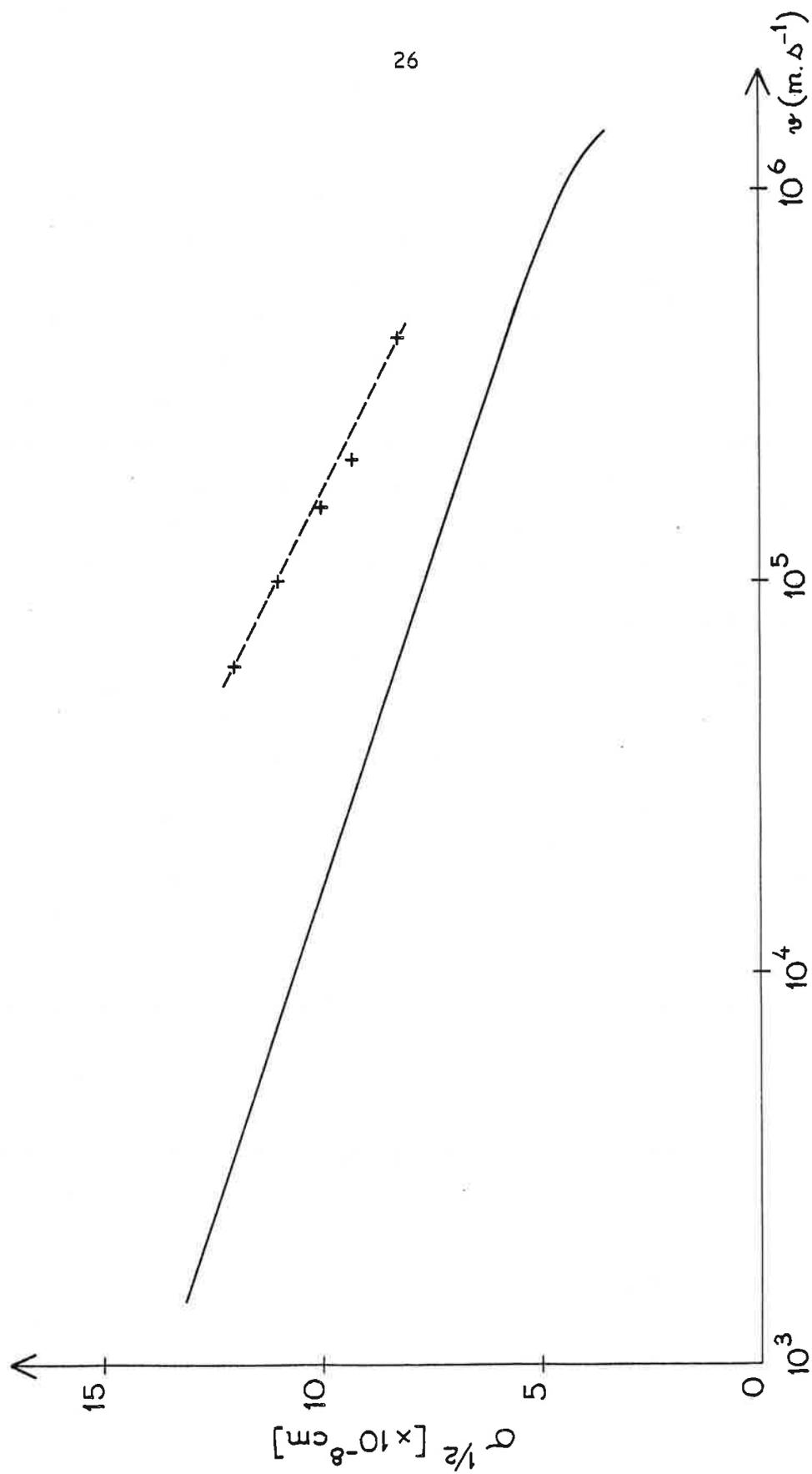


Figure 4 : Section efficace de transfert de charge résonnant en fonction de la vitesse de l'ion calculée d'après [17]. Résultats expérimentaux (----) d'après [19].

du transfert de charges qui se produit dans une collision ayant lieu à une vitesse donnée. La Figure 4 montre les résultats du calcul de la section efficace de transfert de charges en fonction de la vitesse effectué dans le cas d'une collision entre un ion et un atome de sodium ; ce calcul n'a nécessité que la connaissance du potentiel d'ionisation de l'élément considéré ($I=5,1$ eV pour Na) . Pour chacun des points, correspondant à une vitesse donnée, on a déterminé le paramètre d'impact $b_1(v)$; pour cela, on a résolu l'équation (8) :

$$P(b_1, v) = 0,25$$

en utilisant la méthode des approximations successives de Newton. La section efficace correspondant à ce paramètre d'impact a été ensuite calculée à l'aide de la relation : $\sigma = \frac{1}{2} \pi b_1^2$. Sur la Figure 4, on voit que σ varie linéairement avec le logarithme de $1/v$, et vérifie donc bien la relation (9), jusqu'à des valeurs de v voisines de 10^6 m/sec. Au-delà de cette vitesse, l'approximation semi-classique du paramètre d'impact n'est plus valable : la vitesse orbitale de l'électron à l'intérieur de l'atome, relativement à la vitesse de translation de l'atome, n'est plus assez grande pour justifier l'hypothèse de séparation des mouvements électronique et atomique dans l'approximation de Born-Oppenheimer. Il en résulte une réduction de la section efficace en dessous de la valeur prédite par la méthode du paramètre d'impact. La section efficace d'échange de charges résonnant, dans une collision qui se produirait à la vitesse relative $v = 2 \cdot 10^5$ m/s (ce qui correspond, dans nos conditions expérimentales, à la neutralisation d'un faisceau d'ions Na^+ d'énergie égale à 5 keV dans une vapeur d'atomes neutres Na), prédite par la théorie de Rapp et Francis, est égale à :

$$\sigma_{\text{res}} = 0,46 \cdot 10^{-14} \text{ cm}^2 .$$

Un nombre considérable de mesures expérimentales de sections efficaces d'échange de charge entre ions et atomes alcalins sont décrites dans la littérature [18, 21] . Sur la même Figure 4 ont été portées aussi les sections efficaces d'échange de charges observées dans des collisions du type $\text{Na}^+ - \text{Na}$ par Perel et al. [19] . D'autres mesures effectuées sur des collisions $\text{Cs}^+ - \text{Cs}$, $\text{K}^+ - \text{K}$ et quelques gaz rares sont

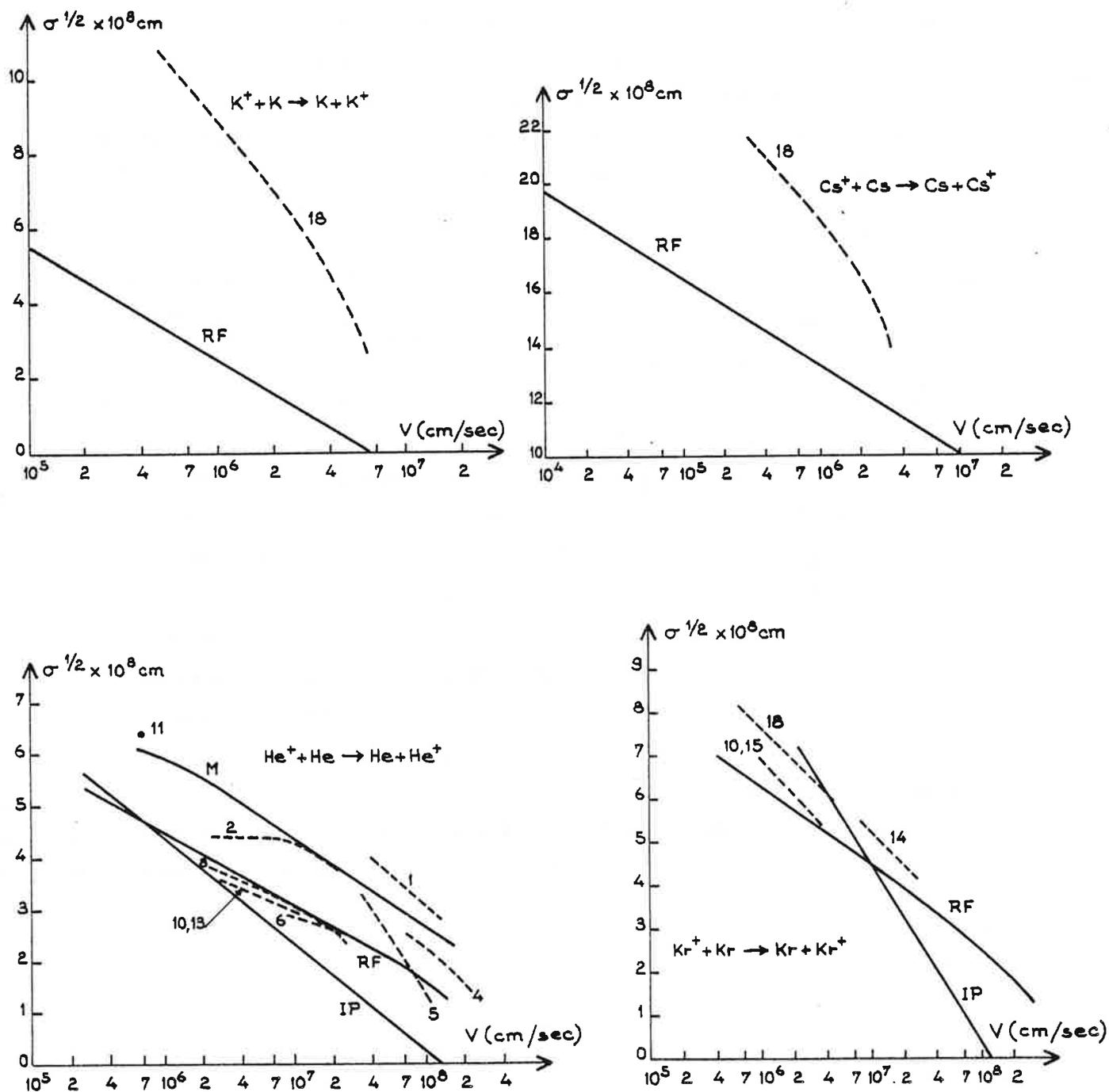


Figure 5

Comparaison expérience (---) - théorie (—) pour quelques réactions de transferts de charge résonnants (d'après Rapp et Francis [17]).

comparées en Figure 5 aux courbes théoriques telles qu'elles peuvent être calculées à partir de la théorie de Rapp et Francis.

La comparaison entre les courbes expérimentales et théoriques conduit à une prédiction qualitative correcte du comportement de σ en fonction de la vitesse de l'ion incident. Cependant, les courbes théoriques marquent une tendance générale à se situer en dessous des courbes expérimentales. Une première raison est que l'équation (4) sous-estime probablement l'interaction ion-atome pendant la collision. L'utilisation de potentiels d'interaction plus raffinés (Figure 5, courbes M et I P) conduit en effet à des valeurs de sections efficaces supérieures à celles que donne le modèle de Rapp et Francis, et plus proches des courbes expérimentales. D'autre part, jusqu'ici, seules les réactions résonnantes ont été prises en compte. Les collisions du type :



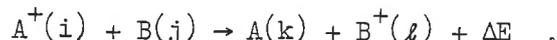
pour lesquelles l'échange de charge se produit avec des transitions vers des états électroniques différents des états initiaux, ont été négligées. Or, dans une expérience de collision réelle, ces échanges de charges avec excitation, bien que non-résonnants, mettent en jeu des sections efficaces qui peuvent se révéler non négligeables à grande vitesse. D'autre part, les jets d'ions utilisés dans ces expériences peuvent contenir aussi des ions portés dans différents états métastables. Ceci est particulièrement le cas des jets d'ions accélérés de gaz rares (Ne - Ar - Kr - etc..) produits par la source d'ions dans divers états métastables. Ceci complique encore l'analyse du phénomène en ajoutant un grand nombre de nouvelles voies de transfert de charges.

Ces remarques montrent bien que les processus non résonnants ($\Delta E \neq 0$) ne peuvent être négligés dans le calcul de la section efficace d'échange de charges par collision. De nombreux travaux expérimentaux ont d'ailleurs souligné l'importance du défaut d'énergie ΔE comme paramètre dans la détermination de la variation de la section efficace d'échange de charge en fonction de l'énergie cinétique des ions [20].

Rapp et Francis ont appliqué aux réactions non résonnantes le même traitement que celui qui a été décrit dans le cas des transferts résonnants, en se plaçant encore dans l'approximation de collisions avec grands paramètres d'impact (comparés aux dimensions des atomes entrant en collision). C'est ce traitement qui est décrit dans le paragraphe qui suit.

b) Echange de charge non résonnant.

Le transfert de charge met en jeu une transition électronique entre deux états électroniques. Dans les collisions se produisant à des vitesses intermédiaires, pour lesquelles le paramètre d'impact est de l'ordre de quelques Angströms, on peut supposer que les moments angulaires et les moments de spin sont conservés pendant une réaction du type :

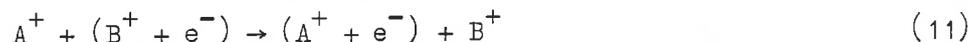


On est autorisé alors à ne prendre en considération que les transitions de la molécule AB^+ qui ont lieu entre états électroniques de même symétrie et qui tendraient asymptotiquement vers les états atomiques $A^+ + B$ et $A + B^+$ quand la distance internucléaire R tend vers l'infini. L'approche théorique rigoureuse du problème consisterait alors à écrire la fonction d'onde totale comme une combinaison linéaire des orbitales moléculaires de la molécule AB^+ :

$$\begin{aligned} \Psi = C_A(t) \Phi_A^{(AB^+)}(R) \cdot e^{-i E_A^{(AB^+)}(R) \cdot t/\hbar} \\ + C_B(t) \Phi_B^{(AB^+)}(R) \cdot e^{-i E_B^{(AB^+)}(R) \cdot t/\hbar} . \end{aligned} \quad (10)$$

Dans cette expression, $\Phi_i^{(AB^+)}(R)$ est l'orbitale moléculaire de AB^+ qui se prolonge par l'orbitale atomique Φ_i lorsque $R \rightarrow \infty$, alors que $E_i^{(AB^+)}(R)$ est l'énergie de cet état qui devient, lorsque R est très grand, l'énergie E_i de l'état atomique.

L'approximation, très souvent utilisée, consiste à remplacer dans l'équation de Schrödinger les orbitales et les énergies moléculaires (qui conduiraient à des équations différentielles très difficiles à résoudre) par les orbitales et les énergies atomiques. Dans ce modèle simplifié, le processus d'échange de charge est mis sous la forme :



où l'électron de valence célibataire peut être rattaché à l'ion A^+ ou à B^+ . La fonction d'onde totale de l'électron dans le champ combiné des ions A^+ et B^+ est décrite comme :

$$\Psi = C_A(t) \Phi_A(r_A) e^{-i\omega_A t} + C_B(t) \Phi_B(r_B) e^{-i\omega_B t} \quad (12)$$

Φ_A et Φ_B étant les orbitales atomiques de l'électron sur les noyaux A^+ et B^+ , r_A et r_B étant les distances de l'électron par rapport aux noyaux des ions A^+ et B^+ et E_A et E_B les énergies de A^+ et B^+ dans les états atomiques Φ_A et Φ_B respectivement. L'équation (12) représente en réalité l'approximation d'ordre zéro de la fonction d'onde dans laquelle on utilise les formes asymptotiques de Φ et E bien que R garde une valeur finie, ce qui, encore une fois, n'est valable que dans le cas de paramètres d'impact très grand devant les dimensions des atomes.

L'équation de Schrödinger dépendant du temps pour l'électron en présence de A^+ et B^+ s'écrit alors :

$$\left[-\frac{\hbar^2}{2m_e} \nabla^2 + V_A(r_A) + V_B(r_B) \right] \Psi = i \hbar \frac{\partial \Psi}{\partial t} \quad (13)$$

$V_A(r_A)$ (respectivement $V_B(r_B)$) représente le potentiel effectif liant l'électron e^- à A^+ (ou B^+). Les coordonnées utilisées pour décrire cette collision sont les mêmes que celles qui ont été utilisées dans le cas de collisions symétriques. Le mouvement relatif d'une des particules par rapport à l'autre suit la trajectoire classique $x = vt$, qui est reliée au paramètre d'impact b et à la distance internucléaire R par la relation $x^2 = R^2 - b^2$. Les coordonnées de l'électron r_A et

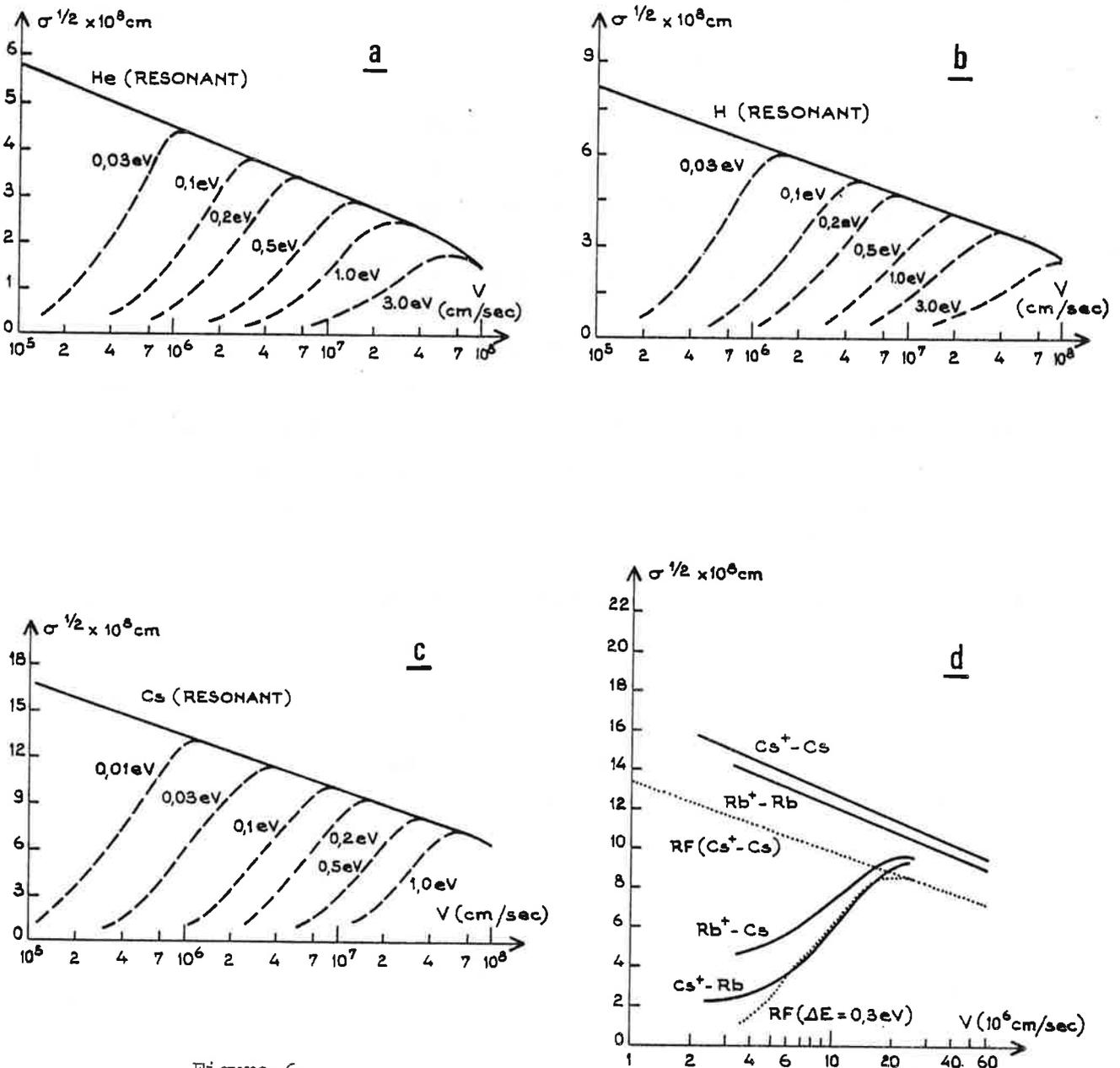


Figure 6

a,b,c : Courbes théoriques de transfert de charge résonnant (—) et non résonnant (---) d'après le modèle de Rapp et Francis

d : Comparaison entre courbes expérimentales (—) et théoriques (.....) pour quelques réactions résonnantes et non résonnantes d'après [21].

r_B ne sont donc pas indépendantes. La résolution de l'équation de Schrödinger est complexe et des simplifications supplémentaires sont nécessaires pour mener à bien le calcul. Dans ces conditions, on ne peut espérer de cette théorie guère plus qu'un accord qualitatif avec les résultats des expériences, ceci étant dû, d'ailleurs, autant à la simplicité du modèle théorique qu'à l'ambiguïté des données expérimentales qui, très souvent, sont le résultat de plusieurs processus simultanés dont certains surviennent entre états excités des deux partenaires de la collision.

Le modèle théorique de Rapp et Francis prédit qu'aux vitesses élevées, la section efficace de transfert de charge suit la même loi de variation (8) établie dans le cas du transfert résonnant :

$$\sigma^{1/2}(v) = A - B \log v .$$

Dans la région des basses vitesses, le comportement de $\sigma(v)$ peut être décrit par :

$$\sigma(v) \simeq \frac{\gamma^2 v^4}{a_0^2 (\Delta E/\hbar)^4} . \quad (14)$$

D'une manière générale, on peut donc dire que le comportement à vitesse élevée (dans le domaine des vitesses intermédiaires défini auparavant) ne dépend pas du type de transfert auquel on s'intéresse. En revanche, lorsque la vitesse est plus faible, la section efficace de transfert dépend fortement de ΔE .

La Figure 6 montre les courbes théoriques tracées pour quelques éléments (H , He , Cs) ainsi que la comparaison expérience-théorie pour quelques réactions résonnantes et non résonnantes entre ions de césium et de rubidium. Ces figures montrent que les sections efficaces de transfert non résonnant croissent uniformément jusqu'à une valeur maximum atteinte pour une certaine vitesse v_m dépendant étroitement de la valeur absolue du défaut d'énergie ΔE de la réaction de transfert. Au-dessus de cette vitesse v_m , les différentes courbes se rapprochent de la courbe de transfert résonnant. Globalement, la théorie de Rapp et Francis prévoit que, pour un ion donné, la section

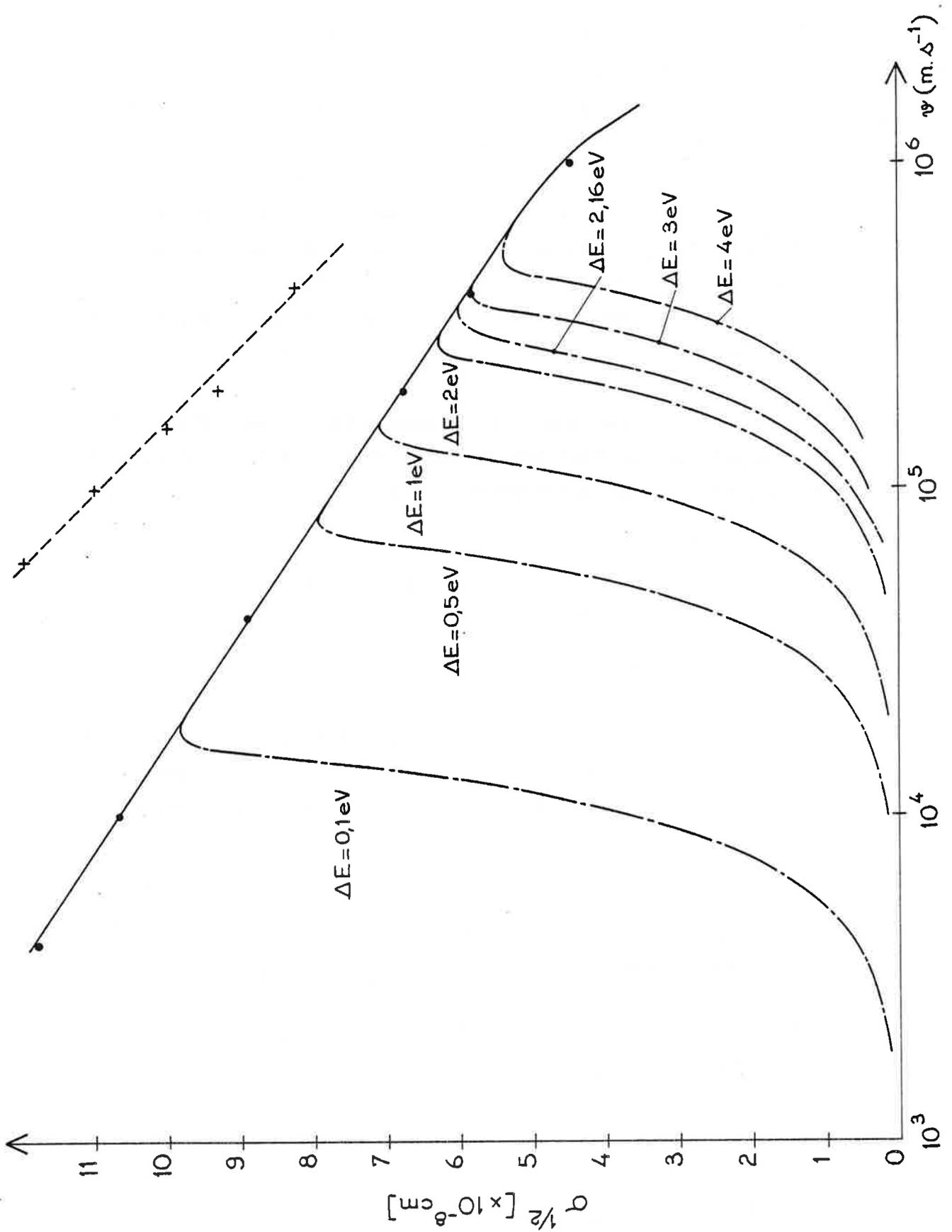
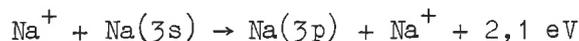


Figure 7 : Sections efficaces de transferts de charge résonnant (—) et non résonnants (-.-.-) pour la réaction $\text{Na}^+ - \text{Na}$, en fonction de la vitesse. La courbe (-.-) est tirée d'après Perel et al. [19].

efficace à son maximum décroît lorsque le défaut d'énergie croît . La dernière Figure 6 provenant des travaux des auteurs de la référence [21] montre un bon accord général entre courbes expérimentales et théoriques. La courbe théorique de transfert non résonnant calculée pour un défaut d'énergie $\Delta E = 0,3$ eV correspond bien à la différence d'énergie $\Delta E = 0,28$ eV entre les deux niveaux fondamentaux du Cs et du Rb et la section efficace maximum prédite à une vitesse $v = 2,2 \cdot 10^5$ m/sec. est très proche de la valeur expérimentale estimée à $2,3 \cdot 10^5$ m/sec.

c) Transfert de charge dans le cas d'un jet d'ions Na^+ .

Nous avons calculé les sections efficaces d'échanges de charge non résonnants entre ions et atomes de sodium pour différentes valeurs du défaut d'énergie ΔE en suivant la méthode de Rapp et Francis. Les résultats obtenus à l'aide de ces calculs ont été portés sur la Figure 7 . Le jet d'ions que nous avons utilisé est accéléré jusqu'à lui faire atteindre la vitesse $v = 2 \cdot 10^5$ m/sec. A cette vitesse, on prévoit que les transferts non résonnants possèdent des sections efficaces non négligeables. En particulier, la réaction de neutralisation :



a lieu avec une excitation de l'atome neutralisé dans l'état 3p et une perte d'énergie cinétique pour le jet égale à l'écart d'énergie entre les niveaux 3s et 3p ($\Delta E \approx 2,1$ eV).

On peut déduire des courbes tracées qu'à la vitesse $v = 2 \cdot 10^5$ m/sec, on a :

$$\begin{aligned} \sigma_{\rightarrow 3s} &= 45,83 \cdot 10^{-16} \text{ cm}^2 = 45,83 \text{ \AA}^2 \\ \text{et } \sigma_{\rightarrow 3p} &= 7,06 \cdot 10^{-16} \text{ cm}^2 = 7,06 \text{ \AA}^2 . \end{aligned}$$

Théoriquement, il est donc possible que 15% des ions du jet rapide soient neutralisés dans l'état excité 3p . Les niveaux excités supérieurs correspondent à des écarts d'énergie plus importants, par rapport au niveau fondamental. Les sections efficaces prédites pour ces niveaux, à une vitesse donnée, sont alors beaucoup plus faibles. C'est ainsi que

la probabilité de neutralisation avec excitation de l'atome produit dans l'état $4s$ (correspondant à un écart d'énergie $\Delta E \approx 3,2 \text{ eV}$), pour la même vitesse v que précédemment, tombe à

$$\sigma_{\rightarrow 4s} = 1,44 \cdot 10^{-16} \text{ cm}^2 .$$

Encore une fois, la simplicité du modèle de Rapp et Francis doit inciter à une certaine prudence, et plus particulièrement à l'égard du modèle de calcul des sections de transfert non-résonnant. Il ne faut donc pas s'attendre à un accord parfait entre les résultats de mesures expérimentales et les courbes tracées d'après Rapp et Francis.

Une deuxième source de complications dans la comparaison des calculs théoriques avec les résultats expérimentaux rapportés dans la littérature provient de la disparité de ces résultats expérimentaux mêmes. En effet, une brève revue des méthodes expérimentales mises en oeuvre à notre connaissance jusqu'à présent, pour la détermination des sections efficaces de transfert de charge, montre que la détection de la réaction est effectuée par des techniques de comptage de particules [21, 22, 23]. L'ambiguïté de ces mesures provient de l'indiscernabilité des états d'énergie dans lesquels sont transférés ions et atomes après l'échange de charge. En effet, dans ce type de mesure, la contribution des états excités aussi bien, d'ailleurs, dans les produits de la réaction de transfert de charge que dans les jets d'ions n'est pas prise en compte. La nature exacte de la réaction mesurée - résonnante ou non résonnante - est sujette à équivoque dans ces expériences. Ceci mène à une grande variété dans les résultats rapportés par des auteurs différents décrivant les mêmes expériences. Dans certains cas de collisions asymétriques entre deux éléments possédant des potentiels d'ionisation très différents, il peut arriver que certaines réactions mettent en jeu des niveaux excités séparés par un écart d'énergie ΔE inférieur à l'écart entre les niveaux fondamentaux. La réaction de transfert de charge entre ces niveaux excités sera alors prépondérante et la section efficace correspondante supérieure à la section efficace de transfert de charge entre les états fondamentaux des deux atomes. Dans ces derniers cas,

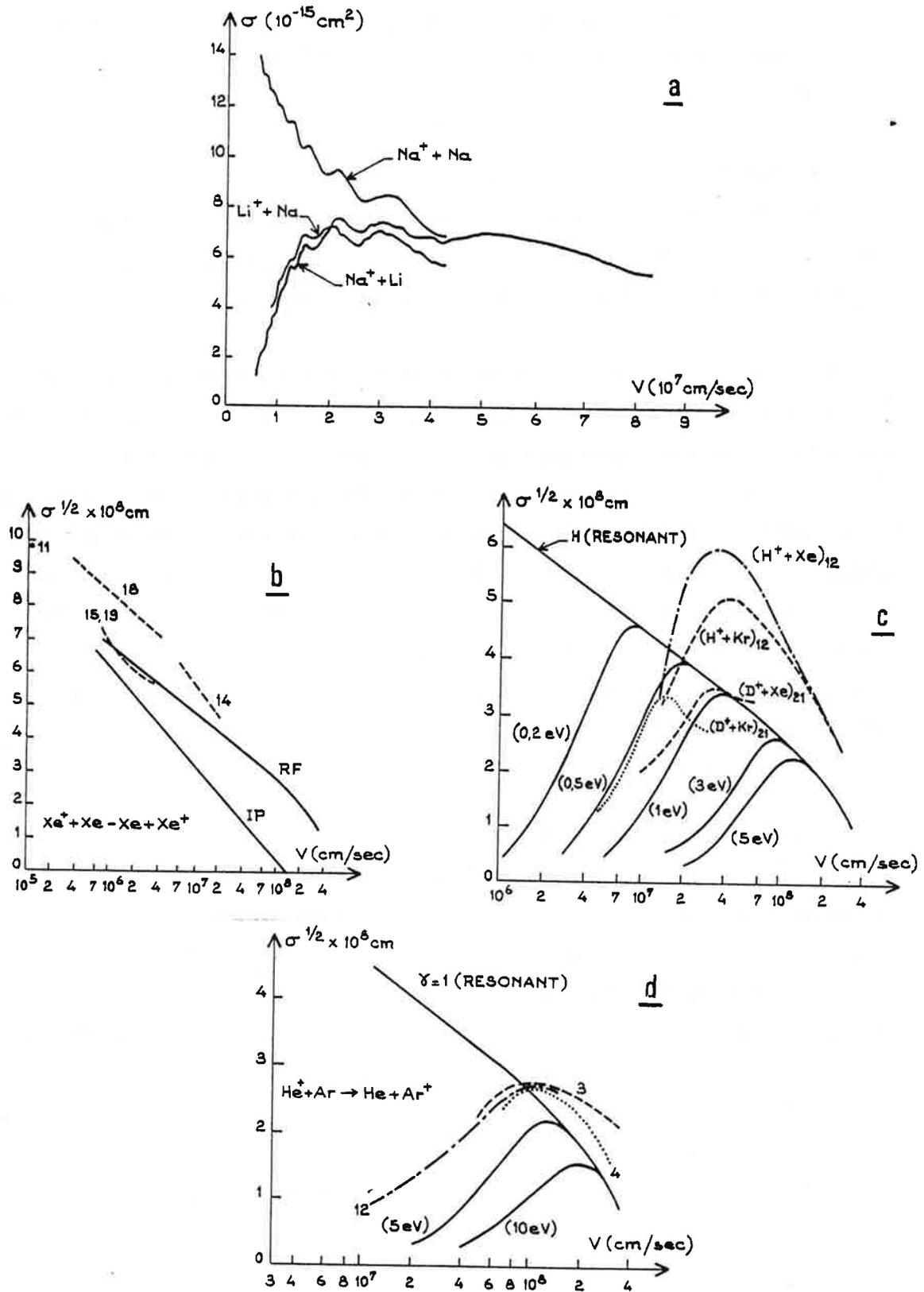


Figure 8

a : Sections efficaces de transfert de charges mesurées par Perel et al. [22]
 b, c, d : Comparaison théorie (—) - expérience (---) pour quelques réactions
 de transfert entre quelques gaz rares.

à une vitesse donnée, sont alors beaucoup plus faibles. C'est ainsi que la comparaison avec la théorie portera à croire, évidemment, à un désaccord flagrant.

Les Figures 8a-d illustrent la disparité des résultats expérimentaux ainsi que de certains travaux théoriques autres que ceux de Rapp et Francis, dans le cas de transferts de charges symétriques et asymétriques entre certains métaux alcalins et gaz rares.

Les mesures les plus précises de sections efficaces de transfert de charge entre alcalins ont été réalisées par Perel et ses collaborateurs qui ont utilisé des techniques de jets d'ions et d'atomes croisés [19, 21, 22]. Ces auteurs, d'une manière générale, notent un bon accord entre leurs résultats expérimentaux et les calculs de Rapp et Francis avec, néanmoins, une tendance à se situer au-dessus des résultats de ces calculs. Pour la réaction de transfert qui nous concerne, entre ions et atomes de sodium, à la vitesse $v = 2 \cdot 10^5$ m/s, Perel et al. ont mesuré une section efficace de transfert de charge globale (Figure 8a) égale à [21] :

$$\sigma \sim 95 \cdot 10^{-16} \text{ cm}^2 .$$

Leurs mesures, comme il a été dit plus haut, ne tiennent compte que du nombre d'ions neutralisés et sont insensibles à l'état d'énergie des produits finaux de la réaction de transfert. Il est donc impossible de séparer, dans ce type de mesure, la contribution du transfert non résonnant vers un état excité de l'atome neutralisé de celle du transfert résonnant vers son état fondamental. Il convient de faire remarquer ici qu'une expérience qui discriminerait entre ces deux types de réaction doit obligatoirement être sensible à l'état d'énergie du faisceau d'atomes neutralisé ; comme on le verra dans le chapitre traitant des méthodes d'observation des résonances optiques par détection de la fluorescence d'un jet atomique rapide excité par un laser, la spectroscopie colinéaire s'est révélée être une technique tout à fait adaptée à ce genre d'expériences.

d) Conclusion.

Le modèle semi-empirique de Rapp et Francis qui a été décrit permet de faire des estimations assez proches de la réalité des sections efficaces de neutralisation par échange de charge entre un ion et un atome entrant en collision, lorsque le paramètre d'impact est assez grand devant les dimensions atomiques.

Ce modèle prédit des probabilités de transfert de charges importantes avec des sections efficaces de l'ordre de 10^{14} cm², dans le cas des réactions quasi résonnantes. Les deux paramètres les plus critiques pour ces prédictions théoriques sont :

- la vitesse relative des ions incidents par rapport aux atomes cibles ;
- la différence ΔE des énergies d'ionisation de l'électron qui a subi le transfert entre son état initial et son état final.

D'une manière générale, il a été prouvé théoriquement et expérimentalement que les ions sont neutralisés de préférence dans les états finaux qui correspondent aux valeurs les plus faibles possibles pour ΔE . L'efficacité de la neutralisation sera démontrée expérimentalement après la description du fonctionnement de la cellule d'échange de charges que nous avons construite à cet effet ainsi que du faraday cup utilisé pour la détection de l'intensité des faisceaux d'ions et d'atomes neutres transmis.

D - Largeurs de raies théoriques.

A la sortie de la cellule d'échange de charges, on dispose d'un jet d'atomes neutres, monocinétique et rapide. Comme on l'a vu au paragraphe B, dans le cas d'un jet d'atomes rapide, une excitation colinéaire est plus appropriée à des expériences de spectroscopie à haute résolution alors que la configuration en faisceaux croisés est certainement préférable dans le cas d'un jet d'atomes se déplaçant à une vitesse thermique. Dans la première configuration, le déplacement des fréquences de résonances atomiques est effectivement important mais il ne constitue pas un obstacle technique sérieux avec les lasers à colorant actuels accordables sur des plages de fréquence très larges.

Ce paragraphe est consacré à l'étude des largeurs de raies auxquelles on peut s'attendre lorsqu'on excite colinéairement un jet rapide : le phénomène de regroupement des vitesses provoqué par l'accélération est alors très avantageusement exploité pour produire des raies d'une grande finesse. Les différentes sources d'élargissement seront passées en revue et une estimation théorique de la résolution limite de la méthode sera donnée.

Le jet rapide considéré est composé d'atomes de sodium, d'énergie égale à 5 keV, animés donc de la vitesse $v = 2 \cdot 10^5$ m/s. La neutralisation s'effectue à l'intérieur d'une vapeur du même élément.

1. Elargissement dû à l'effet Döppler.

D'après la théorie cinétique des gaz, la vitesse moyenne des atomes sortant d'un four chauffé à la température T est

$$v_0 = \frac{2}{\sqrt{\pi}} \left(\frac{2kT}{m} \right)^{1/2} .$$

Dans la direction de propagation du jet rapide, la dispersion des vitesses d'origine thermique est réduite par l'accélération initialement imposée aux ions. Le facteur de réduction R a été déjà calculé :

$$R = \frac{\Delta v_a}{\Delta v_0} = \frac{v_0}{v_a} = \left(\frac{kT}{eU}\right)^{1/2} = 9,2 \cdot 10^{-3} \sqrt{\frac{T}{U}} .$$

La distribution des vitesses dans la direction perpendiculaire à l'accélération n'est, bien évidemment, pas modifiée. La dispersion des vitesses longitudinales entraîne donc un élargissement Döppler relatif égal à :

$$\left(\frac{\Delta v}{v}\right)_L = R \frac{v_0}{c}$$

v_0 représente la fréquence de résonance des atomes au repos.

L'élargissement Döppler à l'intérieur d'une vapeur de sodium portée à la même température que la source d'ions étant égal à : $\left(\frac{\Delta v}{v}\right)_{\text{vap}} = \frac{v_0}{c}$, on voit que l'accélération réduit aussi la largeur de raie d'un facteur R :

$$(\Delta v)_L = R (\Delta v)_{\text{vap}} .$$

Dans la pratique, la largeur des raies va aussi dépendre de la divergence angulaire $\Delta\theta$ du faisceau d'ions autour de la direction moyenne d'accélération. La divergence angulaire du faisceau laser est négligeable devant celle du faisceau d'ions. La projection sur la direction du faisceau laser des vecteurs vitesses \vec{v}_a conduit à la largeur relative :

$$\left(\frac{\Delta v}{v}\right)_1 = \frac{v_a}{c} [1 - \cos(\Delta\theta)] \cong \frac{v_0}{c} \frac{\Delta\theta^2}{2R} ,$$

tandis que la contribution des composantes des vitesses thermiques perpendiculaires à \vec{v}_a est de l'ordre de

$$\left(\frac{\Delta v}{v}\right)_2 \cong \frac{v_0}{c} \Delta\theta .$$

La largeur Döppler quadratique totale est due à la réunion des trois effets qui viennent d'être cités :

$$(\Delta\nu)_{\text{Tot}} = (\Delta\nu)_{\text{vap}} \left\{ R^2 + \left(\frac{\Delta\theta^2}{2R} \right)^2 + \Delta\theta^2 \right\}^{1/2} .$$

Dans nos conditions expérimentales, et pour une ouverture angulaire du faisceau égale ou inférieure dans la pratique à 5 milliradians, on calcule que :

$$(\Delta\nu)_{\text{vap}} = 1,76 \text{ GHz} \quad \text{et} \quad R = 5 \cdot 10^{-3}$$

pour des ions émergeant de leur source à la température moyenne $T = 1500^\circ\text{K}$. On prévoit donc des élargissements de l'ordre de :

$$(\Delta\nu)_L = 8,8 \text{ MHz}$$

$$(\Delta\nu)_1 = 4,4 \text{ MHz}$$

$$(\Delta\nu)_2 = 8,8 \text{ MHz}$$

et une largeur Döppler quadratique totale pour les raies spectrales égale à 13,2 MHz et donc comparable à la largeur naturelle des atomes de sodium égale à 10 MHz.

2. Elargissement par collisions.

La neutralisation du faisceau d'ions par collisions avec transfert de charges doit être réalisée sans que l'élargissement résultant modifie de façon significative le profil de raie du faisceau d'ions incident. Nous allons voir que, pour ce type d'expériences, l'existence de sections efficaces de transfert de charge importantes fournit bien plus que l'assurance d'une neutralisation efficace : en effet, au cours d'une collision qui se produit avec un paramètre d'impact important, la quantité de mouvement transférée par la particule incidente à la particule cible est faible ; dans ces conditions, la définition de la vitesse du faisceau d'ions primaire est presque intégralement transférée au faisceau neutre. En revanche, dans le cas des collisions pour lesquelles

la valeur du paramètre d'impact est faible, les atomes neutralisés sont diffusés à de grands angles et sont perdus. Si on appelle σ_D la section efficace totale de diffusion élastique et σ_T la section efficace de transfert de charge, la proportion des atomes neutralisés diffusés aux grands angles est donnée par le rapport σ_D / σ_T . Dans le modèle classique des sphères dures, la collision entre deux atomes de masse M et de rayon $\frac{1}{2} a$ peut se traiter de la même manière que la collision d'une particule de masse $\frac{1}{2} M$ avec un obstacle de masse infinie et de rayon a . Pour une telle collision, le potentiel d'interaction est donné par :

$$\begin{cases} v(r) = 0 & (r > a) \\ \rightarrow \infty & (r \leq a) \end{cases} .$$

La section efficace de diffusion élastique classique est alors égale à :

$$\sigma_D = \pi a^2 .$$

Dans le modèle de l'atome de Bohr, le rayon de la $n^{\text{ième}}$ orbite est donné par la relation :

$$r_n = \frac{n^2}{Z} a_0 ,$$

a_0 : rayon de Bohr ; Z : numéro atomique de l'élément.

On aboutit à l'estimation de la section efficace de diffusion élastique

$$\sigma_D \simeq 2,3 \cdot 10^{-16} \text{ cm}^2 .$$

La section efficace de transfert de charge résonnant σ_T étant égale à $95 \cdot 10^{-16} \text{ cm}^2$, on voit qu'environ 2% du faisceau neutralisé sera perdu à cause de cette diffusion aux grands angles. Les atomes restant ont été diffusés dans des directions faisant un angle faible avec la direction du jet d'ions incident. En appliquant les lois de conservation de l'énergie et de la quantité de mouvement au cours d'une collision, on peut trouver que l'énergie cinétique δE transférée à l'atome de sodium cible par un ion incident d'énergie cinétique E_i est

$$\delta E = E_i \sin^2 \theta \sim E_i \theta^2$$

où θ est l'angle de diffusion.

L'élargissement moyen dû à cette diffusion aux petits angles peut être alors évalué en fonction de la valeur moyenne de θ :

$$\left(\frac{\delta v}{v}\right)_c = \frac{v_a}{c} \delta E = \frac{v_a}{c} eU \langle \theta^2 \rangle .$$

L'expression classique de l'angle de diffusion élastique est donnée par la formule [

$$\theta = \pi - 2 \int_{r_0}^{\infty} \frac{dr}{r \left\{ \frac{r^2}{p^2} \left(1 - \frac{V(r)}{E} \right) - 1 \right\}^{1/2}}$$

où E est l'énergie cinétique de la particule incidente avant et après la collision ; $V(r)$ est le potentiel d'interaction entre les atomes distants de r , p est le paramètre d'impact de la collision et r_0 la racine positive du dénominateur de la fraction (ou la plus grande des racines positives s'il y en a plus d'une). Pour de grandes valeurs du paramètre d'impact, le potentiel d'interaction reste faible à travers tout le domaine d'intégration , l'angle de déflexion sera petit et le paramètre d'impact p sera voisin de la racine r_0 . On peut montrer, en suivant la démonstration de Kennard [24] que, pour un potentiel d'interaction du type charge - dipole induit :

$$V(r) = \frac{1}{4\pi\epsilon_0} \cdot \frac{e^2 \alpha}{2r^4} \quad (\alpha : \text{polarisabilité atomique})$$

l'angle de déflexion peut être approché par la relation :

$$\theta \sim \frac{3\pi}{8} \frac{e^2 \alpha}{E} \frac{1}{p^4} .$$

L'énergie cinétique du système dans le repère du laboratoire est entièrement apportée par l'ion incident. Donc :

$$E = e U \quad , \quad U \text{ étant la tension accélératrice.}$$

D'autre part, la polarisabilité dipolaire de l'atome est une quantité qui a la dimension d'un volume et qu'on peut relier par une bonne approximation au rayon de l'atome :

$$\alpha \neq r_n^3 = 7,95 \cdot 10^{-26} \text{ cm}^3 .$$

On peut alors calculer la valeur moyenne du carré de l'angle de diffusion entre les deux valeurs du paramètre d'impact correspondant à $(\sigma_D/\pi)^{1/2}$ (paramètre d'impact pour la diffusion élastique) et $(\sigma_T/\pi)^{1/2}$ (paramètre d'impact pour les collisions avec transfert de charge). On obtient alors l'expression suivante pour la contribution de l'échange de charge à la largeur de raie :

$$(\Delta\nu)_c = \frac{38,6 \nu(v_a/c)(e\alpha/8\pi\epsilon_0 U)^2}{\sigma_D^3 \cdot (\sigma_D \cdot \sigma_T)^{1/2}} .$$

On obtient ainsi un élargissement de l'ordre de 950 KHz . Il est à remarquer que le potentiel en r^{-4} surestime certainement l'interaction entre l'ion et l'atome cible ; l'élargissement calculé est donc une limite supérieure et on peut en conclure que la neutralisation par collisions avec transfert de charge n'affecte pas la qualité du jet de façon notable.

3. Élargissement provoqué par le recul des atomes.

Une source supplémentaire d'élargissement provient du décalage en fréquence provoqué par le recul des atomes réémettant spontanément la lumière absorbée. Si, en moyenne, un atome absorbe N photons du faisceau lumineux excitateur, sa quantité de mouvement sera modifiée de la valeur $\delta p = \frac{Nh}{\lambda}$ par l'émission spontanée des photons absorbés. Il en résulte un déplacement en fréquence égal à :

$$(\delta\nu)_R = \frac{Nh}{m \lambda^2} .$$

La contribution à la largeur de la raie dans la direction du faisceau atomique et du faisceau laser est donc

$$(\Delta\nu)_R = \frac{(\delta\nu)_R}{\sqrt{3}} = \frac{Nh}{\sqrt{3} m \lambda^2} .$$

Pour des raies d'émission situées dans le visible, cet élargissement est de l'ordre du mégahertz pour des valeurs de N de l'ordre du nombre de masse de l'atome. En pratique, dans la majorité des cas, le

pompage optique restreindra le nombre moyen de photons absorbé par chaque atome à une valeur beaucoup plus faible et l'élargissement correspondant sera donc inférieur au mégahertz.

En conclusion, on peut estimer la largeur de raie totale en additionnant toutes les contributions à cette largeur y compris la largeur naturelle. Pour l'exemple du sodium et dans les conditions expérimentales déjà citées, si on fait de plus l'approximation que la largeur totale est la racine de la somme des carrés de chaque élargissement élémentaire

$$(\Delta\nu)_{\text{Totale}} = \left[\sum_i (\Delta\nu)_i^2 \right]^{1/2} \approx 16 \text{ MHz} .$$

On montre ainsi que les raies d'absorption ou d'émission de lumière dans une excitation colinéaire d'un jet atomique rapide sont extrêmement étroites.

4. Déplacements de la fréquence d'émission dus aux transferts de charge non résonnants.

Considérons le transfert de charge non résonnant :

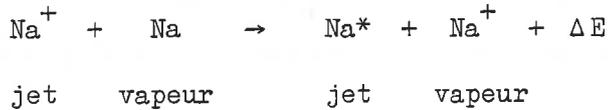


Comme nous l'avons défini précédemment, ΔE correspond à la perte d'énergie interne du système au cours du transfert. ΔE représente donc aussi le gain d'énergie cinétique du système puisque l'énergie totale ne doit pas varier. En appliquant les lois de conservation de l'énergie et de la quantité de mouvement pour un choc qui change peu la direction et la vitesse de la particule rapide B, on peut montrer que l'énergie cinétique transférée à la particule cible est environ

$\frac{(\Delta E)^2}{4eU} \ll \Delta E$. C'est donc sur la particule rapide que se reporte la totalité de la variation d'énergie cinétique. Elle subit donc une variation de vitesse :

$$\frac{\Delta v}{v_a} \approx \frac{1}{2} \frac{\Delta E}{eU} .$$

Considérons le cas particulier du transfert de charge d'ions sodium Na^+ sur une cible de sodium. Les transferts de charge non résonnants sont de la forme



Ici ΔE est négatif car l'énergie interne des éléments du second membre est supérieure à celle des éléments du premier membre de la réaction. Il y a perte d'énergie cinétique pour le jet rapide. $|\Delta E|$ est égal à l'énergie d'excitation de l'atome neutralisé.

L'atome excité se désexcite ensuite en émettant un photon, donc sans changement notable de sa vitesse :



Les atomes neutralisés via un état excité forment donc à l'intérieur du jet atomique une classe particulière se déplaçant moins vite. Leur fréquence de résonance apparente sera donc décalée par rapport au centre de la raie principale de la quantité :

$$(\delta\nu)_{\Delta} = v \frac{v_a}{c} \frac{\Delta E}{2eU}$$

Ce phénomène se manifeste par l'apparition d'une raie satellite distante de la raie principale de l'écart spectral $(\delta\nu)_{\Delta}$. Les intensités respectives des deux raies renseignent sur les probabilités relatives des deux types - résonnant et non résonnant - de processus d'échange de charges. Dans la réaction étudiée $\text{Na}^+ - \text{Na}$, le premier niveau d'énergie excité est séparé du niveau fondamental du Na par l'intervalle $|\Delta E| \sim 2,1 \text{ eV}$. Sur les enregistrements des raies de résonance, le processus non résonnant doit se manifester par l'apparition d'un pic secondaire éloigné de la raie principale de l'intervalle $(\delta\nu)_{\Delta} = 71,3 \text{ MHz}$ (le jet principal étant animé de la vitesse $v = 2 \cdot 10^5 \text{ m/s}$).

Dans le cas où le défaut d'énergie dans le bilan énergétique de la collision est peu important, le décalage en fréquence $(\delta\nu)_{\Delta}$ est faible par rapport à la largeur spectrale de la raie principale ; le processus non résonnant se traduit par une asymétrie dans le pied de la raie de résonance, du côté du spectre correspondant aux vitesses inférieures.

On peut remarquer que, pour un ΔE constant, v_a étant proportionnel à U , $(\delta\nu)_{\Delta}$ est proportionnel à $1/\sqrt{U}$. On passera donc, en augmentant U , d'une situation où l'on a une raie principale et une raie satellite à une situation où l'on a une seule raie asymétrique [6].

Enfin, il faut noter que l'on observe une variation de l'intensité de la raie satellite (ou une variation de l'asymétrie) en fonction de la pression de la vapeur-cible. Ceci ne peut pas s'expliquer à partir des deux processus d'échange de charges décrits ci-dessus et il faut faire intervenir des collisions multiples. L'ensemble du phénomène sera décrit en détail dans le chapitre.

Quant aux transferts de charge conduisant à des niveaux excités $n\ell$ autres que le niveau de résonance $3p$, ils mettent en jeu des écarts d'énergie $|\Delta E|$ supérieurs ; ces voies de transfert ont donc une probabilité très faible.

5. Conclusion.

La compression de la dispersion des vitesses consécutive à l'accélération produit une forte réduction de l'élargissement Döppler en spectroscopie colinéaire. Dans des conditions favorables, la largeur Döppler résiduelle peut être rendue de l'ordre de la largeur naturelle, ce qui permet d'amener en résonance avec la lumière tous les ions de façon simultanée.

D'autre part, les sections efficaces des collisions avec transfert

de charges entre les ions et les atomes d'alcalins, à des énergies de l'ordre de quelques kiloélectrons-volts, sont de l'ordre de 10^{-14} cm². Ceci correspond à des paramètres d'impact très supérieurs au rayon atomique. Le transfert de quantité de mouvement entre faisceau d'ions et vapeur cible est donc faible et la distribution des vecteurs vitesse du faisceau d'atomes neutralisé est sensiblement identique à celle du faisceau d'ions incident

E - Excitation colinéaire et pompage optique.

Introduction.

Grâce à l'excitation laser colinéaire, le temps d'interaction entre les atomes et la lumière est suffisamment long pour permettre l'utilisation d'une puissance laser faible. De plus, comme les vitesses sont regroupées par l'accélération, on peut approcher la résolution limite imposée par la durée de vie des niveaux. La détection de la lumière de fluorescence réémise par les atomes excités est limitée en sensibilité par des facteurs géométriques dépendant du dispositif de détection, par le rendement quantique des photomultiplicateurs, etc.. Cependant, elle reste très élevée pour autant qu'il n'y ait pas de pompage optique sur la raie de résonance observée. En effet, la sensibilité de cette méthode de détection est surtout restreinte par ce dernier phénomène. Quand on augmente la puissance de l'excitation optique, les photons de fluorescence sont émis sur une longueur de faisceau de plus en plus courte et dans une zone située au début de la région d'interaction entre les atomes et la lumière. Dans le cas de l'excitation colinéaire d'un faisceau d'atomes neutres formés à partir d'un faisceau d'ions, cette zone de fluorescence se trouve confinée à l'intérieur de la cellule d'échange de charges où, pour des raisons pratiques, on ne peut pas détecter la fluorescence.

Pour une région de détection de longueur fixée, on montre qu'il existe une puissance optimale donnant un maximum de fluorescence. Ce sont ces conditions que nous allons maintenant essayer de préciser.

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

Le système atomique comporte trois niveaux d'énergie : un niveau excité c et deux niveaux a et b appartenant tous deux au fondamental de l'atome. C'est un système fermé. Un rayonnement laser monochromatique de direction de

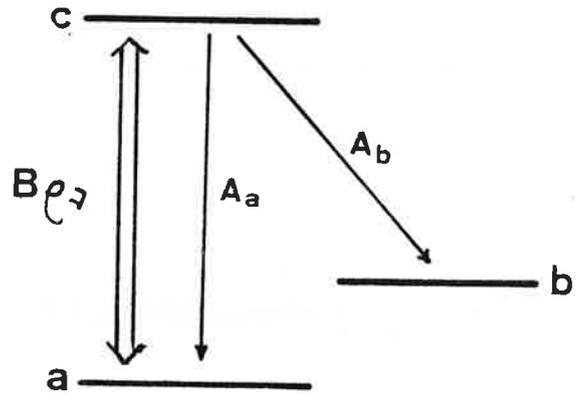


Figure 9

de propagation colinéaire au jet atomique peuple sélectivement le niveau c à partir du niveau a . On suppose que l'écart d'énergie entre les niveaux b et a est suffisamment grand pour que le rayonnement laser ne couple pas a et b . Les probabilités d'absorption et d'émission stimulée entre les niveaux a et c , par unité de temps, sont égales au produit du coefficient d'Einstein B de la transition par la densité spectrale ρ_ν de la lumière excitatrice ; on suppose que les niveaux a et c ont même poids statistique. Le niveau c peut se désexciter vers les niveaux a et b avec les probabilités d'émission spontanée A_a et A_b . $A = A_a + A_b$ est l'inverse de la durée de vie du niveau c .

$$\tau_c = \frac{1}{A_a + A_b} .$$

A l'instant initial, au début de l'interaction entre les atomes, il y a N_0 atomes par unité de volume dans le niveau d'énergie a , les niveaux b et c sont vides. L'évolution des populations respectives des trois niveaux, sous l'action du rayonnement laser peut être décrite par le système d'équations différentielles suivant :

$$\begin{cases} \frac{d N_a}{dt} = B \rho_v (N_c - N_a) + A_a N_c \\ \frac{d N_c}{dt} = - (A_a + A_b) N_c + B \rho_v (N_a - N_c) \\ \frac{d N_b}{dt} = A_b N_c \end{cases}$$

avec, bien sûr, $N_a + N_b + N_c = N_0$.

La résolution du système montre que l'évolution de la population du niveau a est décrite par l'équation :

$$N_a(t) = N_0 \frac{\lambda_2 - B \rho_v}{\lambda_2 - \lambda_1} e^{-\lambda_1 t} + N_0 \frac{B \rho_v - \lambda_1}{\lambda_2 - \lambda_1} e^{-\lambda_2 t}$$

où λ_1 et λ_2 sont solutions de l'équation caractéristique du déterminant du système précédent

$$\lambda_{1,2} = \frac{1}{2} \left\{ A_a + A_b + 2 B \rho_v \pm \left((A_a + A_b + 2 B \rho_v)^2 - 4 A_b B \rho_v \right)^{1/2} \right\}.$$

A des puissances laser de quelques milliwatts par cm^2 , l'émission stimulée est très faible devant l'émission spontanée et on peut négliger le terme $B \rho_v$ devant A_a . La solution λ_1 devient très grande devant λ_2 et on peut montrer que la dépendance en fonction du temps de la population du niveau de départ a varie comme :

$$N_a(t) = N_0 e^{-\alpha B \rho_v t}$$

où α est le rapport de branchement : $\alpha = \frac{A_b}{A_a + A_b}$.

On voit que α est compris entre 0 et 1. Dans le cas d'atomes de sodium, α peut prendre les trois valeurs $\frac{5}{6}$, $\frac{1}{2}$ et $\frac{1}{6}$.

On peut à présent calculer le nombre d'atomes présents à l'abscisse x , dans le niveau a, par unité de volume :

$$\mathcal{N}_a^0(x) = N_a(t) \frac{dt}{dx} = \frac{N_0}{v} e^{-B \rho_v \alpha x/v}$$

On en déduit alors le nombre de photons émis par seconde à l'abscisse x

sur l'intervalle dx :

$$N_p(x) dx = \frac{N_0}{v} B \rho_v e^{-B \rho_v \alpha x/v} dx .$$

La détection de la fluorescence, pour des raisons pratiques, n'est effectuée qu'à une certaine distance x_0 du centre de la cellule d'échange de charge, endroit où, en moyenne, les atomes commencent à émettre des photons. Si l'on suppose que la zone de détection s'étend sur une longueur Δx_0 au-delà de la distance x_0 , le nombre de photons recueilli par le détecteur sera obtenu en intégrant l'équation précédente, ce qui amène :

$$N_p(x_0, \Delta x) = \int_{x_0}^{x_0 + \Delta x_0} N_p dx = \frac{N_0}{\alpha} e^{-B \rho_v \alpha \frac{x_0}{v}} \left\{ 1 - e^{-B \rho_v \alpha \frac{\Delta x}{v}} \right\} .$$

Dans des conditions données, à x_0 , Δx_0 , α et v fixés, comment varie la fluorescence en fonction du taux d'absorption $B \rho_v$?

L'étude de la fonction précédente montre que le nombre de photons recueillis par un détecteur d'ouverture Δx_0 est maximal lorsque :

$$B \rho_v \alpha \frac{\Delta x}{v} = \log \left(1 + \frac{\Delta x}{x_0} \right) .$$

Il existe donc une puissance lumineuse optimale donnant un maximum de fluorescence. Il est, bien évidemment, nécessaire que la valeur de x_0 soit très supérieure à la distance parcourue par un atome pendant la durée de vie de son état excité. La longueur de la cellule d'échange de charges étant de l'ordre de quelques dizaines de centimètres, et la vitesse de l'atome de quelques centaines de kilomètres par seconde, on est assuré que cette condition est satisfaite et que l'atome a effectué plusieurs cycles absorption-émission avant d'atteindre la zone de détection. D'autre part, l'ouverture angulaire du détecteur est généralement assez faible et la quantité $\frac{\Delta x_0}{x_0}$ est inférieure à 1.

La condition sur la puissance lumineuse pour que la fluorescence détectée soit maximale s'exprime alors simplement comme :

$$B \rho_v = \frac{v}{\alpha x_0} .$$

Cette relation peut être réécrite en fonction du temps t_0 mis par les atomes pour parcourir la distance x_0 . On trouve alors que :

$$\alpha \cdot t_0 = (B \rho_v)^{-1}$$

ce qui exprime que la puissance laser est optimale lorsque le temps moyen nécessaire pour exciter un atome est égal au produit du rapport de branchement par la durée du trajet parcouru par l'atome depuis le début de l'interaction avec la lumière. Le calcul a été établi en posant :

$$B \rho_v \ll A = \frac{1}{\tau} \quad ;$$

les résultats ne sont donc valables que si : $t_0 \gg \frac{\tau}{\alpha}$.

Pour des atomes de sodium ^{23}Na accélérés par un potentiel de 5 kilovolts et dont la durée de vie du niveau de résonance est égale à 16 ns, la quantité $\frac{\tau}{\alpha}$ est au plus égale à 96 ns, temps durant lequel l'atome a parcouru une distance inférieure à 2 centimètres. Dans ces conditions, les deux inégalités :

$$\frac{\Delta x_0}{x_0} \ll 1 \quad \text{et} \quad t_0 \gg \frac{\tau}{\alpha}$$

sont toujours respectées.

Le nombre de photons maximal recueilli à l'abscisse x_0 est alors :

$$N_p(x_0, \Delta x) = \frac{N_0}{\alpha} \frac{\Delta x}{e x_0} .$$

Ce maximum est donc d'autant plus grand que $\Delta x/x_0$ est grand. La quantité x_0 , à cause de la présence de la cellule de neutralisation, ne peut pas être réduite en deçà d'une certaine valeur. Il reste donc à augmenter Δx jusqu'à des valeurs comparables avec x_0 mais ceci n'est réalisable qu'au prix d'une augmentation de la lumière parasite et de difficultés techniques pour collecter la lumière sur une grande longueur de faisceau. Un compromis doit donc être trouvé et, généralement, on est forcé de travailler avec une quantité $\frac{\Delta x}{x_0} \ll 1$. Dans ce cas, le nombre de photons collectés est très inférieur au nombre total

de photons émis par le jet atomique sur toute la longueur éclairée qui est égal à N_0/α . Le rapport de ces deux quantités :

$$R = \frac{\Delta x}{e x_0}$$

est évidemment indépendant du pompage optique et ne dépend que des conditions pratiques d'observation de la fluorescence.

Conclusion.

Dans des conditions expérimentales données, la sensibilité de la méthode de détection de la fluorescence sera limitée par le pompage optique des atomes vers des niveaux autres que le niveau de départ. La puissance lumineuse du laser excitateur doit être optimisée en fonction du rapport de branchement des niveaux d'énergie de l'atome et du temps de parcours des atomes depuis le début de l'interaction avec la lumière jusqu'à la zone de détection.

La sensibilité maximale sera enfin obtenue dans les cas où le processus de pompage optique n'existe pas. C'est ainsi que des résonances ont été observées avec un flux atomique de l'ordre de 10^5 atomes/seconde, dans le cas de la raie de résonance du Ba I $^1S_0 - ^1P_1$, pour les isotopes de cet élément dépourvus de structure hyperfine dans le fondamental (isotopes pairs) [6].

Chapitre III

DISPOSITIF EXPERIMENTAL

Ce chapitre est consacré à la description du dispositif expérimental mis au point pour les expériences de spectroscopie colinéaire au Laboratoire Aimé Cotton. Les premières expériences ont été réalisées sur des atomes de sodium, afin de tester les différentes méthodes envisagées sur un cas simple et bien connu, mais la conception entièrement modulaire de l'appareillage permet de l'adapter, sans modification pour ses parties essentielles, à une source d'ions autres que les alcalins tels que des ions de gaz rares ou bien encore à le monter en ligne derrière un séparateur d'isotopes pour des expériences sur des isotopes instables.

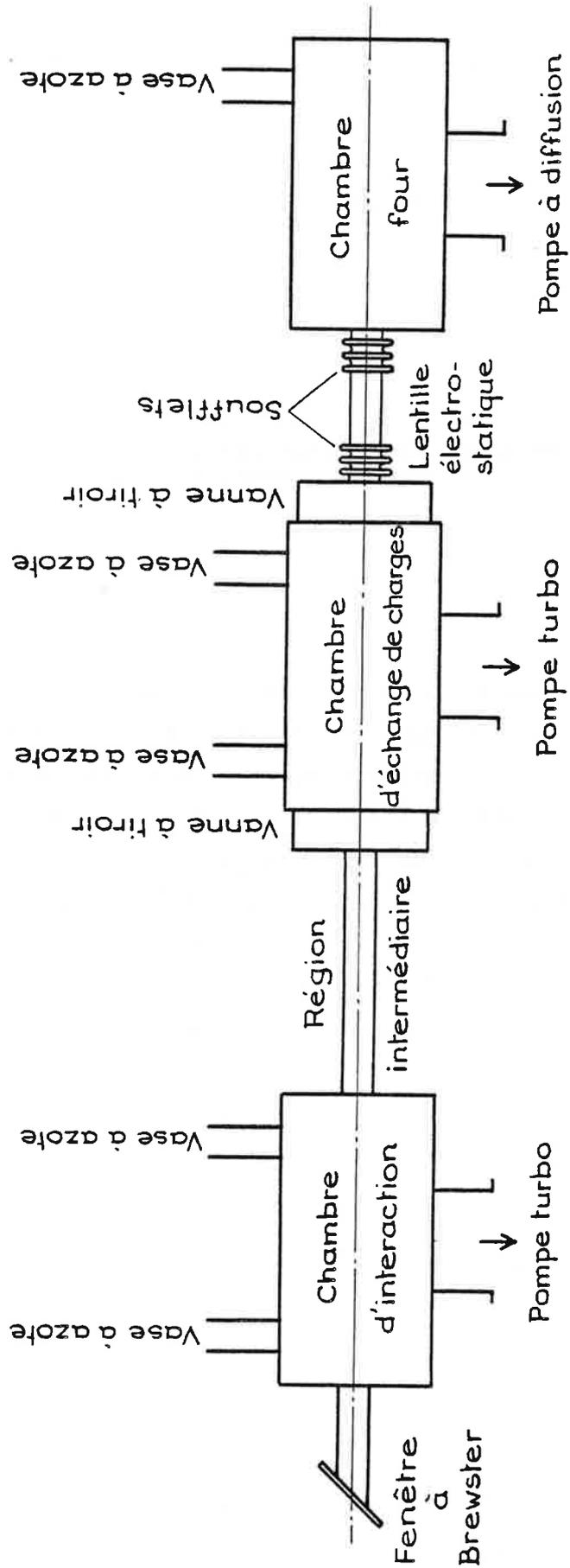


Figure 10

Disposition relative du montage expérimental.

A - Les enceintes - Le vide.

L'appareil comprend trois parties principales :

- la chambre four où les ions sont produits et accélérés pour former un jet d'ions rapide ;
- la chambre de neutralisation où le jet d'ions rapide est transformé en un jet d'atomes neutres de même vitesse après neutralisation par échange de charge avec une vapeur atomique ;
- la chambre d'interaction avec la lumière et de détection de la fluorescence.

La Figure 10 présente un schéma simplifié de l'appareillage ; la disposition relative des trois parties de l'appareil mentionnées ci-dessus est apparente sur la figure.

La chambre four et la chambre de neutralisation sont reliées par un tube cylindrique raccordé aux deux chambres par des soufflets, elles sont donc légèrement mobiles l'une par rapport à l'autre. Ce tube contient une lentille électrostatique et des diaphragmes qui facilitent l'alignement de l'ensemble du dispositif.

Deux vannes à tiroir (VAT) de grand diamètre d'ouverture permettent d'isoler chaque chambre de la (des) chambre(s) voisine(s). Chaque chambre peut donc être pompée de façon indépendante. Suivant les expériences que l'on souhaite faire, les chambres de neutralisation et de détection peuvent être connectées de deux façons différentes.

Lorsque l'on veut détecter l'interaction du laser et du jet le plus près possible de la zone de neutralisation (cas de la détection de la fluorescence en présence de pompage optique) les deux chambres peuvent être connectées de part et d'autre de la vanne, l'espace mort étant alors réduit à l'épaisseur de cette vanne.

Dans d'autres expériences, il est utile d'avoir un assez long trajet de "vol libre". On intercale alors un tube de longueur adéquate (en plus de la vanne) entre les deux chambres. C'est dans cette zone intermédiaire que l'on appliquera en particulier des champs magnétiques extérieurs statique ou radiofréquence (cf. Chapitre VI). Pour chaque chambre, le pompage primaire est assuré par une pompe primaire Alcatel type 2012 A deux étages $15 \text{ m}^3/\text{h}$. Dans la chambre four, la pompe primaire est en série avec une pompe secondaire à diffusion d'huile munie d'un piège à azote liquide.

Les deux autres chambres sont équipées à l'aide de deux pompes turbo moléculaires Balzers du type TPH 570 refroidies à l'eau, tournant à 60.000 tours/mn. Une vanne électro-pneumatique permet d'isoler chaque pompe turbomoléculaire de sa pompe primaire. Une vanne manuelle et un "by-pass" permettent de court-circuiter la pompe secondaire à diffusion d'huile pour pomper en pompage primaire dans la chambre four.

Pour chaque chambre, la pression en vide primaire est mesurée par des jauges à thermocouple et la pression en vide secondaire par des jauges à ionisation.

Un système de sécurité permet de couper l'alimentation des pompes et de fermer les vannes électromagnétiques en cas de panne (refroidissement défectueux des pompes secondaires, remontée anormale de la pression dans l'enceinte, disjonction de l'alimentation électrique, etc..). Grâce à ce système, les chambres de neutralisation et d'interaction peuvent être pompées de façon permanente sans surveillance.

Des écrans en cuivre, refroidis à l'azote liquide sont placés dans l'enceinte au voisinage du trajet des ions et des atomes du jet. Chacun d'eux est maintenu à basse température par l'azote liquide contenu dans des réservoirs situés au-dessus des différentes chambres.

* Avec les pompes secondaires et le refroidissement des pièges et

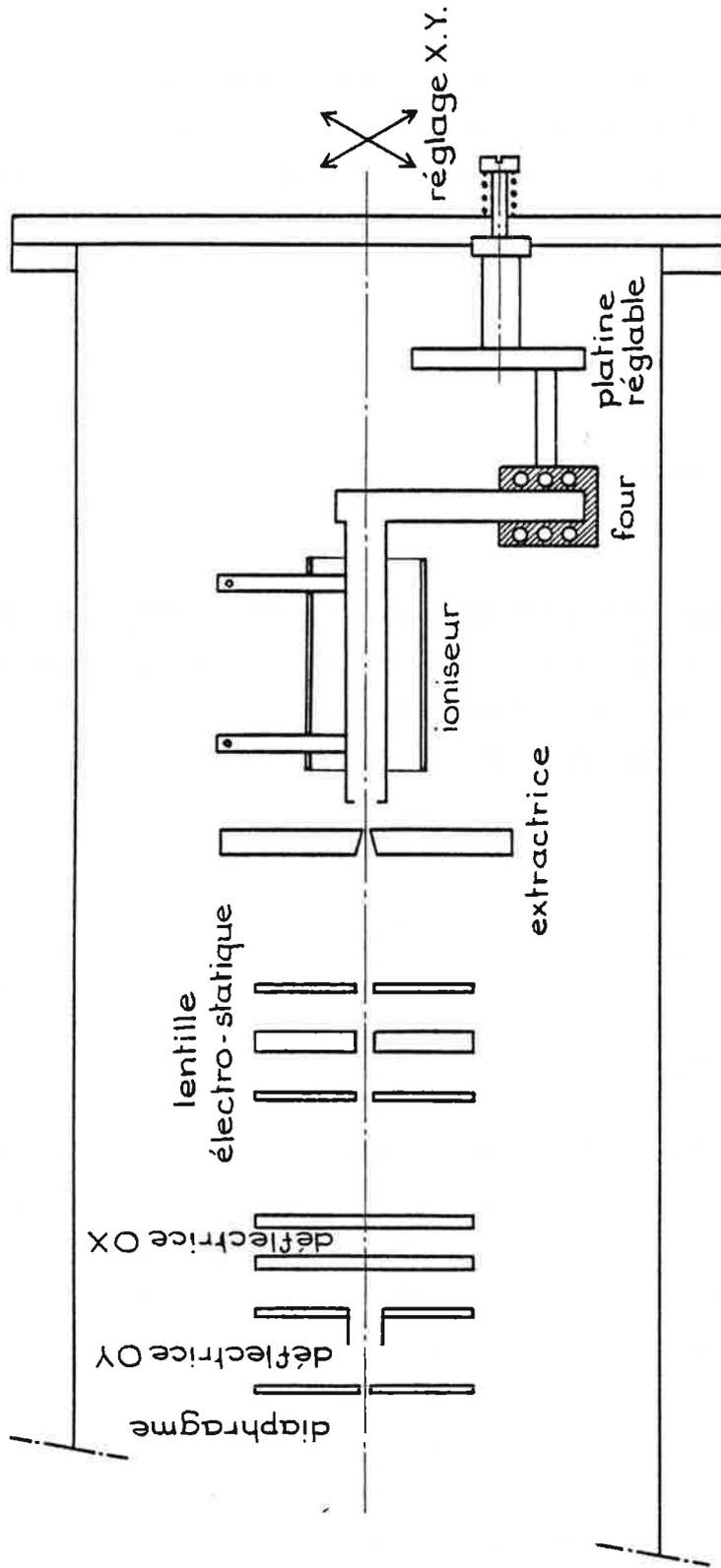


Figure 11 : La première chambre : le four, l'ioniseur et l'optique électrostatique.

diaphragme à l'azote liquide, la pression après quelques heures de pompage descend à environ 1×10^{-7} Torr dans la chambre four, et tombe en dessous de 4×10^{-8} Torr dans les chambres de neutralisation et d'interaction pompées à l'aide des pompes turbomoléculaires.

B - La chambre - four.

La chambre four contient les différents éléments nécessaires à la production d'un jet d'ions accélérés : le four, proprement dit, où se forme la vapeur de l'élément étudié, l'ioniseur qui ionise les atomes en vapeur, les électrodes d'extraction et de déflexion des ions ainsi que les lentilles de focalisation du jet (Figure 11).

1. Le four.

Le four utilisé a été réalisé d'après les indications que l'on peut trouver dans la littérature [8] . Il est constitué par un bloc d'Inox (voir Figure 11) dans lequel une cavité cylindrique de quelques cm^3 de volume peut recevoir le sodium métallique. Le four est chauffé par des enroulements spiralés de fil de tantale, glissés dans des tubes d'alumine creux, eux-mêmes enfoncés dans des trous perçant de part en part la masse du four.

La température du four peut être contrôlée à tout instant grâce à un thermocouple dont l'extrémité est enfermée à l'intérieur d'une alumine creuse, elle-même glissée dans la masse du four. Un système de régulation en température permet de maintenir le sodium à une température fixée à l'avance. Les températures de fonctionnement sont habituellement inférieures à 300°C , mais, dans sa conception

le four peut être chauffé à des températures bien plus élevées.

Le four est fixé sur un support vertical dont il est isolé électriquement grâce à des rondelles doubles en céramique, s'emboîtant l'une dans l'autre. Ce support vertical est lui-même solidaire d'une platine orientable par l'intermédiaire de trois vis appuyant sur un trait-point-plan.

2. L'ioniseur.

Les atomes émergeant du four sont transformés en ions par ionisation de surface dans un dispositif schématisé en figure

L'effet thermo-ionique qui décrit l'équilibre de l'état atomique d'une vapeur mise en contact avec une surface est régi par la loi de Saha-Langmuir :

$$\frac{n_0}{n_+} = \frac{g_0}{g_+} e^{(I-w)/kT}$$

où n_0 (respectivement n_+) est le nombre d'atomes (d'ions) dans la vapeur, g_0 (respectivement g_+) le poids statistique de l'état électronique de l'atome (respectivement de l'ion), W la fonction de travail de l'élément constituant la surface et I le potentiel d'ionisation de l'élément vaporisé. T est la température absolue de la surface ionisante.

Dans le tableau suivant, sont réunis les potentiels d'ionisation et les fonctions de travail de certains éléments [25].

Element	Fonction de travail thermoionique (eV)	Element	Potentiel d'ionisation (eV)
Y	3,2	Li	5,4
Ta	4,2	Na	5,1
W	4,5	K	4,3
Re	4,8	Rb	4,2
Ir	5,3	Cs	3,9

Il convient de noter que l'ionisation de surface est un phénomène caractéristique des alcalins du fait de leur faible potentiel d'ionisation. L'ioniseur utilisé est en tantale chemisé intérieurement avec une feuille de Rhénium dans sa partie active. En effet, la fonction de travail du Rhénium est plus favorable que celle du Tantale mais le rhénium est peu usinable, contrairement au tantale. L'ioniseur est chauffé à une forte température, ce qui permet d'obtenir un rendement proche de l'unité.

L'orifice du four par où s'échappe la vapeur de sodium est fermé par un tube cylindrique de 12 mm de diamètre environ constitué par une feuille de tantale roulée sur elle-même et soudée point par point. La partie supérieure du tube en tantale est percée d'un trou communiquant à angle droit avec un autre tube cylindrique en tantale de longueur voisine de 40 mm et de 3 mm de diamètre environ (Figure 11) ; ce deuxième tube est chemisé intérieurement par une feuille de rhénium roulée sur elle-même. Afin de maintenir le sodium contenu dans le four à une pression de vapeur contrôlable, seule l'extrémité de ce dernier tube de tantale est chauffée violemment à environ 1500°C ; le gradient de température entre les deux tubes de tantale est suffisamment grand pour que le sodium contenu dans le four ne soit pas complètement évaporé à chaque opération d'échauffement du tube fin. L'ionisation de la vapeur, commencée à l'intérieur du tube en tantale, a surtout lieu à l'extrémité du tube de petit diamètre qui est porté au rouge. Le débit à la sortie de l'ioniseur est alors contrôlé par la température de chauffage du four, pour une température de l'ioniseur donnée. Le chauffage

auxiliaire du four permet de contrôler plus précisément la température du four. L'ensemble four - ioniseur est polarisé positivement à une tension de 5 kV. Le chauffage de l'ioniseur est assuré grâce à deux amenées de courant en cuivre. Une feuille de tantale, en forme de cylindre, enveloppe l'ioniseur et lui sert d'écran thermique. Le chauffage de l'ioniseur est assuré par une alimentation 5V - 100 A , à 5 kV. Le courant de chauffage nécessaire pour amener l'ioniseur à une température de 1500°C est de l'ordre de 60 A. La chute de tension à l'intérieur de l'ioniseur, bien que très faible ($\sim 2V$), suffit à guider les ions formés vers l'extérieur. D'un autre côté, il est nécessaire qu'elle soit maintenue aussi faible que possible afin que les ions émergents de l'ioniseur aient tous une vitesse initiale très faible. Le chauffage du four proprement dit est assuré par un variac ; sa température est régulée par un "statop". Four et ioniseur étant polarisés à 5 kV, les alimentations en courant sont réalisées par l'intermédiaire de transformateurs d'isolement.

3. L'extraction des ions. Leur déflexion.

Un disque percé d'un trou conique de 2 mm, d'ouverture angulaire égale à 30° et porté à un potentiel inférieur de quelques centaines de volts (4700 V environ) à la tension de l'ioniseur, est disposé à 2 mm de la sortie de l'ioniseur. Le champ électrique ainsi créé est suffisant pour extraire les ions et les guider à travers le trou de l'extractrice ; l'axe de celle-ci définit mécaniquement l'axe du jet. L'orientation angulaire de l'ioniseur par rapport à cet axe est réglable en agissant sur les vis de la platine portant le four. L'ensemble (platine-four-ioniseur) peut être déplacé horizontalement et verticalement, sous vide, grâce à un réglage extérieur. La position de l'ioniseur par rapport au trou de l'extractrice peut donc être ajustée, de l'extérieur de l'enceinte, pour optimiser l'intensité du jet d'ions.

En sortant de l'extractrice, le jet d'ions traverse une lentille électrostatique cylindrique, du type lentille simple [26] formée de

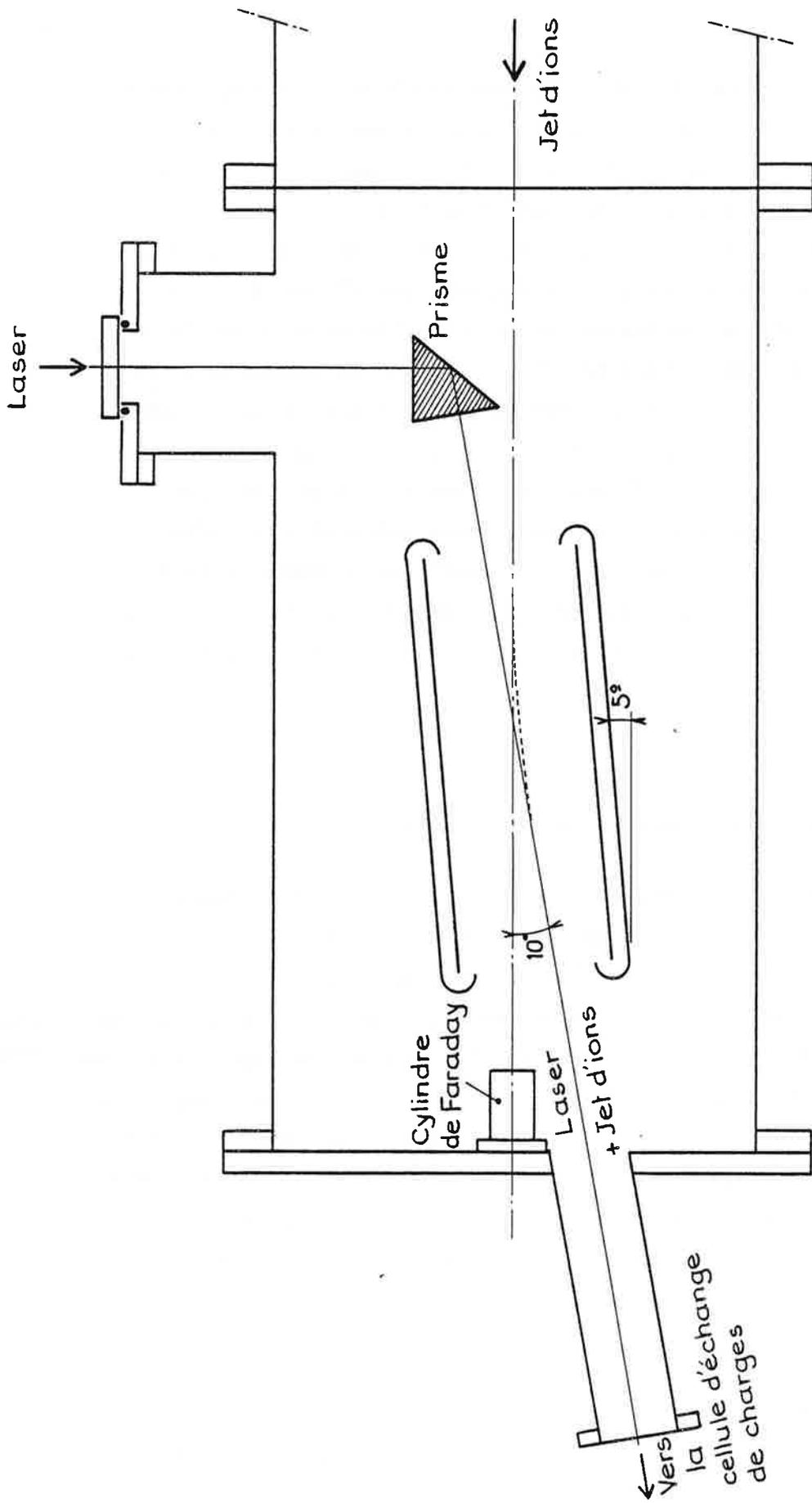


Figure 12 : La première chambre : le système de déflexion du jet d'ions et l'entrée du faisceau laser.

trois anneaux cylindriques, dont l'anneau intérieur est porté à une tension positive voisine de 2000 V, les deux autres étant à la masse (Figure 11). Cette lentille a pour effet de réduire la divergence initiale du faisceau et de lui donner une section cylindrique voisine de 5 mm de diamètre au niveau d'un cylindre de Faraday disposé en bout de l'enceinte à environ 1 mètre du four. Ce cylindre est aligné mécaniquement sur l'orifice de sortie de l'extractrice et l'intensité du courant d'ions qu'il détecte est mesurée par un picoampèremètre rapide Keithley.

La lentille électrostatique est suivie d'un diaphragme percé d'un trou circulaire de diamètre 10 mm ; le diaphragme, relié par une pièce en cuivre à un vase Dewar est refroidi à la température de l'azote liquide.

A la sortie de la lentille électrostatique, le jet d'ions peut subir une déflexion électrostatique grâce à un système de plaques défléctrices disposées dans des plans horizontal et vertical. Les tensions nécessaires pour corriger la direction du faisceau à cet endroit sont inférieures à 50 V.

4. Alignement du faisceau d'ions avec la lumière.

Pour exciter colinéairement le jet d'ions, il faut réaliser une superposition des deux faisceaux ionique et lumineux. Ceci est réalisé en défléchissant le faisceau d'un angle de 10° par rapport à sa direction initiale. Cette déflexion est réalisée par un condensateur formé par deux plaques rectangulaires en cuivre longues de 20 cm et écartées de 10 cm environ. Ces deux plaques sont disposées symétriquement par rapport à l'axe de la chambre four et inclinées d'un angle de 5° (voir Figure 12). La tension nécessaire pour cette déflexion est de l'ordre de 650 V. Afin d'éviter des déformations électrostatiques du faisceau d'ions, l'une des plaques du condensateur est polarisée à -300 V, l'autre à +300 V environ. Le faisceau défléchi passé ensuite à travers

une deuxième lentille électrostatique, du même type que la première ; cette deuxième lentille est polarisée à 1800 V environ ; sa longueur est environ 80 mm , son diamètre 20 mm . Elle est destinée à transformer le faisceau d'ions incident, légèrement divergent encore, en un faisceau quasiment parallèle. Cette deuxième lentille est située à l'extérieur de la chambre four, entre les deux soufflets assurant la liaison entre la chambre de neutralisation et la chambre four ; deux diaphragmes mobiles sont placés en amont et en aval de la lentille électrostatique pour faciliter l'alignement de la lumière avec le faisceau d'ions comme il sera expliqué plus loin.

C - La chambre de neutralisation.

1. La cellule d'échange de charges.

Elle contient essentiellement la cellule de neutralisation et son dispositif de chauffage et de régulation en température. Le schéma simplifié de cette cellule est représenté en Figure 13. Le principe de la neutralisation du jet d'ions incident réside dans l'échange de charge entre ces ions et les atomes d'une vapeur métallique alcaline. La pression de vapeur du métal alcalin utilisé doit être faible, de l'ordre de 10^{-3} Torr, de sorte que l'échange de charges ne s'accompagne pas de collisions inélastiques qui viendraient modifier la direction du faisceau rapide. La cellule où se forme la vapeur doit, bien sûr, être ouverte à ses deux extrémités pour permettre le passage du faisceau (ainsi que celui de la lumière laser), et avoir une consommation en métal assez faible pour autoriser des durées de fonctionnement autonome raisonnables.

Le dispositif que nous avons utilisé réunit toutes ces conditions [27, 28] Il est constitué principalement par un tube cylindrique en Inox, long de 30 cm, de diamètre 20 mm, et muni aux deux extrémités d'ouvertures circulaires de 6 mm de diamètre (Figure 14). La paroi interne du tube est tapissée par une "mèche" formée par l'enroulement sur plusieurs épaisseurs d'une fine toile métallique à mailles très serrées. Le choix du métal qui constitue cette mèche est fait en fonction de l'élément alcalin choisi : la mèche doit être réalisée dans un métal qui est bien "mouillé" par cet alcalin en phase liquide. Dans notre cas, la neutralisation se produisant dans une vapeur de sodium, notre choix s'est porté sur une mèche en acier inoxydable, bien mouillé par le sodium liquide. Le sodium métallique est introduit à l'intérieur de la mèche par la partie supérieure de la cellule qui communique directement avec le centre du canal d'échange de charge (voir Figure 14). La pression de vapeur à l'intérieur de ce canal, en cours de fonctionnement, devant

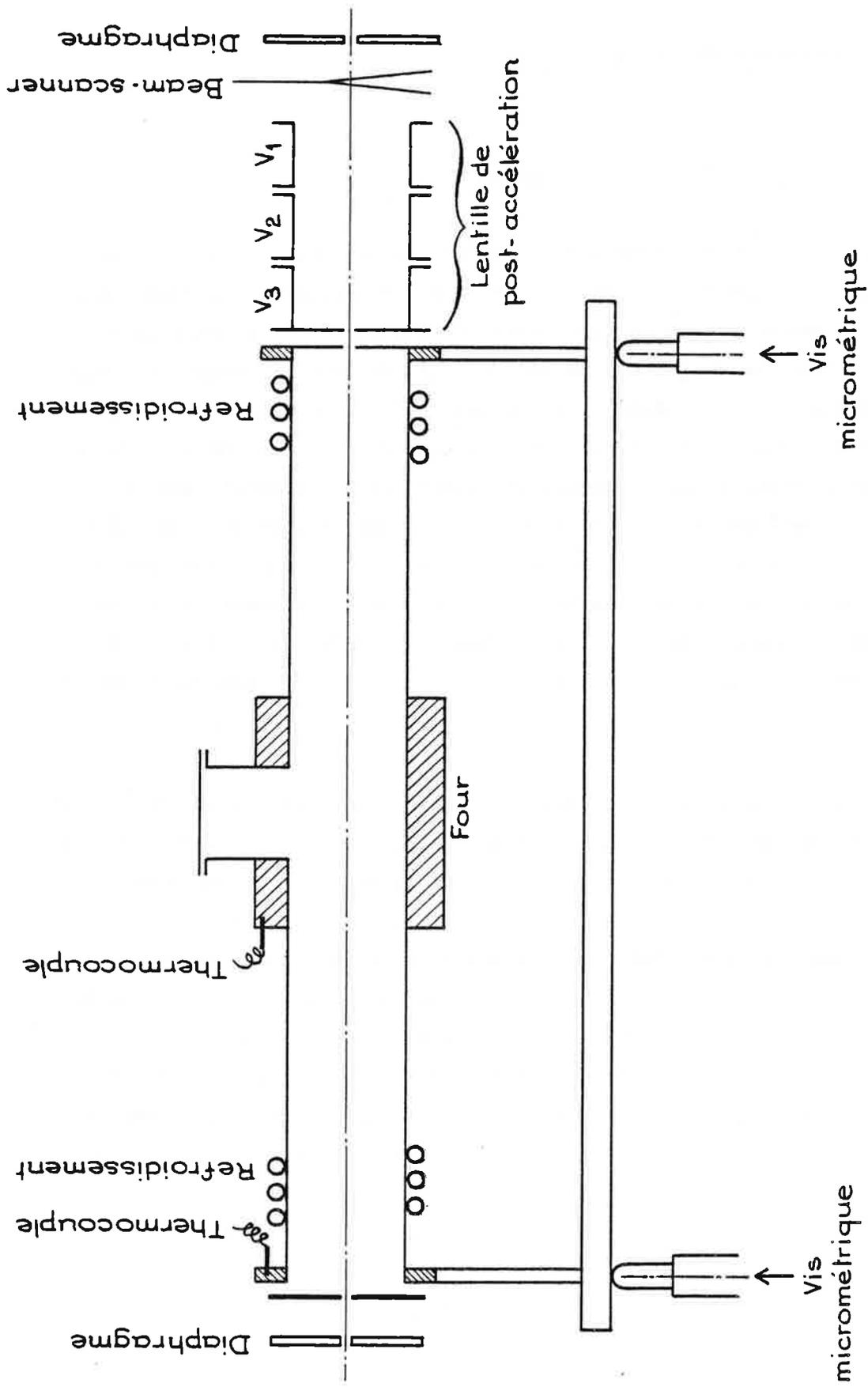


Figure 13 : La chambre de neutralisation.

être de l'ordre de 10^{-3} Torr, la température dans la région centrale est maintenue autour de 250°C par une régulation en température. Le chauffage est assuré par un four entourant la partie centrale de la cellule ; ce four est constitué par deux blocs de cuivre massif emboîtant parfaitement le tube sur une longueur de 10 cm ; des enroulements en tungstène passant dans des tubes d'alumine creux et enfoncés dans la masse de cuivre assurent l'échauffement du four. Un thermocouple enfoncé dans l'un des blocs de cuivre contrôle la température du centre de la cellule et commande une régulation en température.

Le sodium évaporé au centre de la zone chaude se répand vers les extrémités du tube où la pression est plus basse. Afin de limiter la perte de matière par diffusion de cette vapeur, les deux extrémités du tube sont maintenues à une température assez basse pour que la vapeur soit condensée avant d'atteindre l'extérieur. Des enroulements en cuivre ont été brasés pour cela aux deux bouts de la cellule ; ces enroulements sont reliés à une circulation d'huile régulée en température LAUDA qui impose aux deux zones de condensation une température légèrement supérieure à la température de fusion du métal ; par conséquent, en dehors de la région centrale de la cellule, où la température est homogène, il existe un important gradient de température (Figure 15) ; cependant la température, en tout point de la cellule, est plus élevée que le point de fusion du sodium. Grâce à cette précaution, le sodium se condense en phase liquide, mouille la mèche qui tapisse l'intérieur de la cellule et revient par capillarité vers le centre de la zone chaude où il est à nouveau évaporé. La vapeur de sodium est ainsi continuellement recyclée, et les pertes de métal sont minimales [27, 28]. D'autre part, on évite ainsi tout dépôt solide qui pourrait obstruer le passage du jet d'atomes neutralisés et du faisceau laser et diminuer la quantité de sodium mise en circulation au risque d'interrompre le recyclage de la vapeur. Expérimentalement, nous avons vérifié qu'en maintenant la température de l'huile aux alentours de 120°C , le recyclage de la vapeur est assuré jusqu'à des températures de chauffage du four voisines de 450°C ; le métal (sous forme liquide

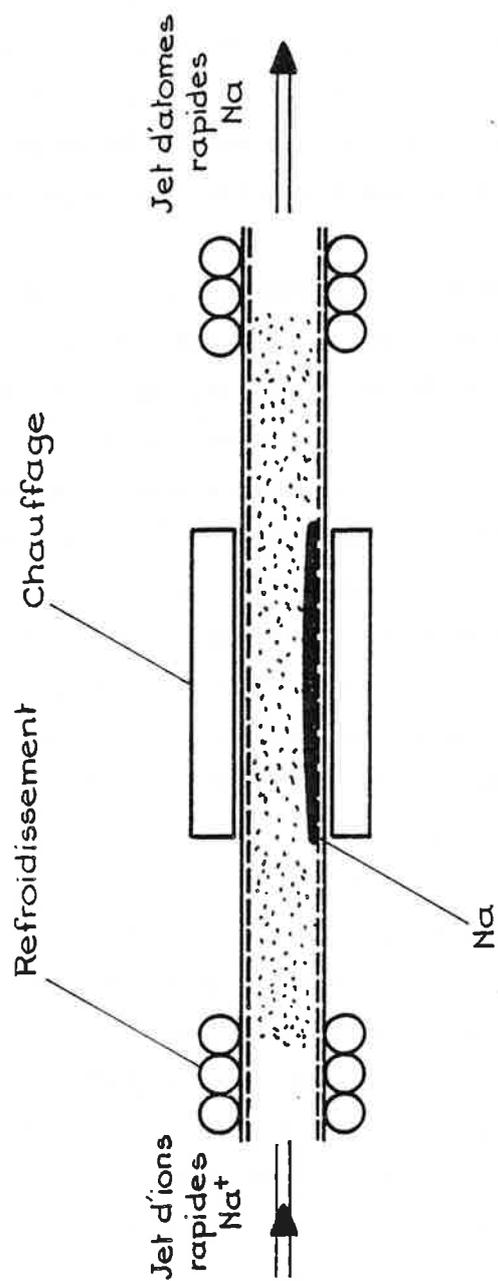


Figure 14

Cellule d'échange de charge. En pointillé, la mèche qui tapisse l'intérieur de la cellule.

et gazeuse) circulant dans la cellule d'échange de charge en cycle quasi-fermé, la durée de service d'un chargement de sodium est de l'ordre de plusieurs mois.

Il convient de noter que, malgré des similitudes apparentes, la cellule d'échange de charge qui vient d'être décrite ne fonctionne pas exactement comme un heat-pipe. Contrairement à celui-ci, la température dans les zones de condensation est imposée à un niveau beaucoup plus bas par rapport à la zone d'évaporation : le flux d'atomes circulant dans la cellule étant beaucoup plus faible, la quantité de chaleur transportée par ce flux de la zone centrale vers les extrémités de la cellule est insuffisante pour élever la température de celles-ci au niveau de la température dans la zone d'évaporation, comme c'est le cas dans un heat-pipe. La mèche sert donc à répartir le métal condensé sous forme liquide et à prévenir d'éventuels dépôts solides, assurant ainsi le retour du sodium liquide vers la zone d'évaporation. En revanche le recyclage continu du métal, consistant en des évaporations et des condensations successives, là aussi entraîne une purification continue du métal.

La cellule est montée sur une platine rectangulaire orientable dans les plans horizontal et vertical, par l'intermédiaire de quatre "doigts pousseurs" appuyant sur les extrémités de la platine. Ces doigts sont reliés par des soufflets souples à des vis micrométriques placées à l'extérieur de la cellule. L'alignement de la cellule est donc effectué sous vide, grâce à ces commandes externes.

Deux diaphragmes en cuivre refroidis à la température de l'azote liquide ont été disposés de part et d'autre de la cellule, leur ouverture est assez grande pour ne pas obstruer le faisceau quelle que soit la position de la cellule ; ils sont destinés à abaisser la pression dans le chambre de neutralisation, en condensant les gaz résiduels.

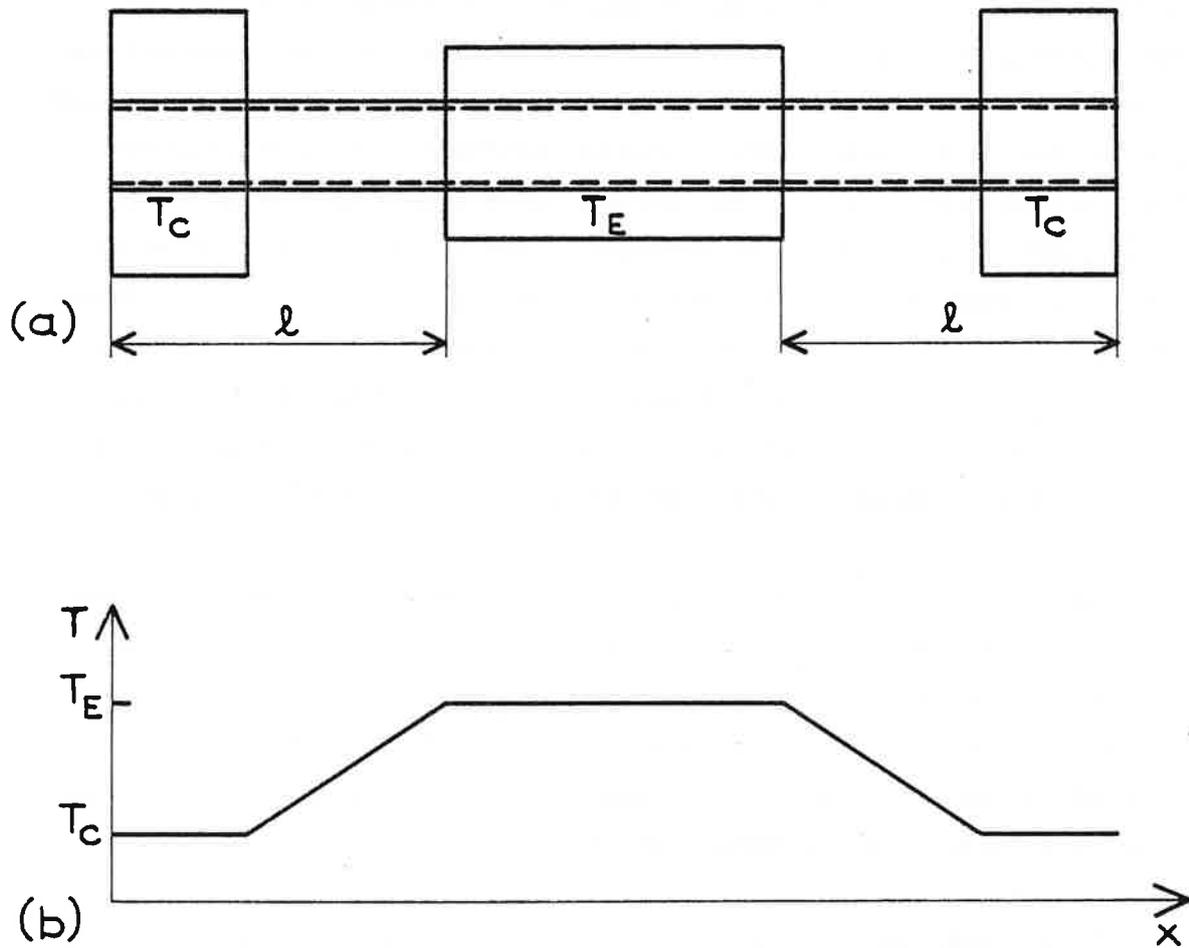


Figure 15

- a) Les trois zones de température dans la cellule d'échange de charge :
 T_E , température de chauffage du four
 T_C , température de refroidissement des extrémités de la cellule.
- b) Répartition de la température à l'intérieur de la cellule

2. Dispositif de balayage de la vitesse des ions.

Pour achever la description de la chambre de neutralisation, il faut signaler la présence d'un dispositif de balayage de l'énergie du faisceau de sodium placé en amont de la cellule de neutralisation (Figure 13) . Ce balayage est effectué donc sur le faisceau d'ions qui peut être accéléré ou décéléré par une tension appliquée à un dispositif placé à l'entrée de la cellule. Pour éviter des effets de focalisation du faisceau, un système de trois électrodes annulaires font varier progressivement le potentiel, donc l'énergie du faisceau sur une longueur de 10 cm. La longueur focale de ce système étant de l'ordre de 4 m pour la tension d'accélération de 5 kV du faisceau d'ions et une post-accélération de 500 V , on est assuré que le balayage de la tension appliquée à la cellule ne modifie pas la forme du faisceau d'ions, et donc du faisceau d'atomes émergent de la cellule d'échange de charge. Ce balayage de la tension est utilisé lorsque la fréquence du laser est maintenue fixe pour amener les atomes en résonance avec la lumière par effet Döppler.

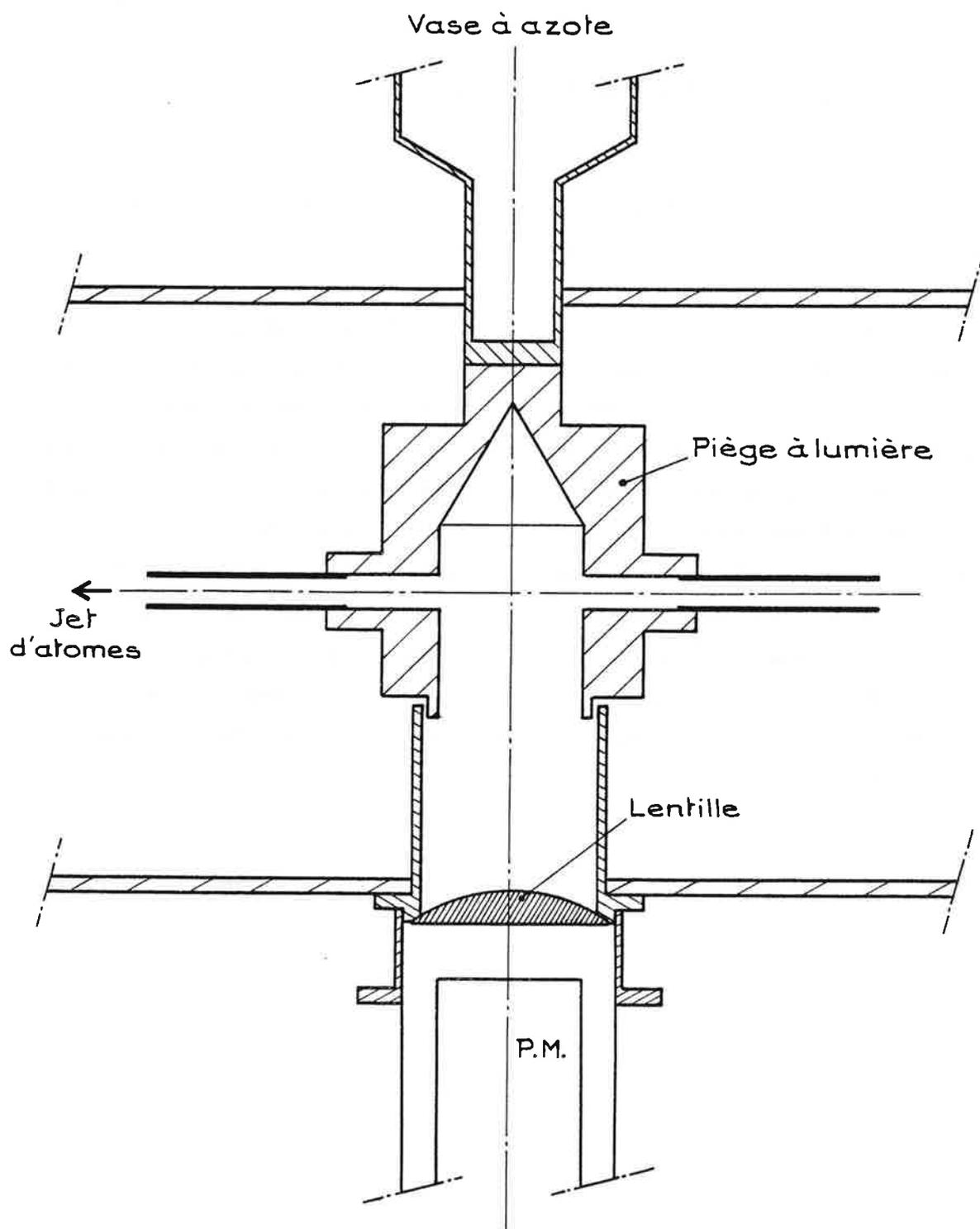


Figure 16

La troisième chambre : le dispositif de détection.

D - La chambre d'interaction.

La chambre d'interaction contient les dispositifs de détection de l'interaction entre la lumière et le jet d'atomes neutres issu de la cellule (Figure 16).

1. Détection de la fluorescence et minimisation de la lumière parasite.

A l'avant de la chambre, un photomultiplicateur (RCA C31034A) très sensible, refroidi à -10°C par effet Peltier, est placé en regard d'une zone d'observation du jet d'atomes longue de 6 cm environ. Une lentille sphérique de même diamètre et de très courte distance focale (~ 5 cm) forme l'image de cette région sur la photocathode. Des précautions particulières ont été prises pour éviter de collecter la lumière parasite au niveau du P.M.. Pour cela, toute la zone d'observation est enfermée à l'intérieur d'un piège à lumière constitué par un boîtier cylindrique peint en noir dont la partie supérieure, en regard du photomultiplicateur, est terminée en forme de cône afin d'emprisonner les rayons réfléchis dans cette direction. De plus, sur une longueur voisine de 10 cm, de part et d'autre de ce boîtier, les faisceaux atomique et lumineux se propagent à l'intérieur de tubes cylindriques, noircis eux aussi et de faible diamètre ($\varnothing \sim 12$ mm). On s'assure ainsi que les rayons lumineux qui pénètrent dans la zone d'observation ont tous la même direction et ne proviennent pas d'une réflexion parasite. L'ensemble du piège à lumière est porté par une pièce en cuivre en contact thermique avec un vase à azote liquide ; la pression dans la chambre en cours de fonctionnement est alors de l'ordre de 4 ou $5 \cdot 10^{-8}$ Torr.

La chambre d'interaction a été conçue de manière à contenir aussi le dispositif de détection des résonances par ionisation par champ.

Ce dispositif occupe la deuxième moitié de l'enceinte, il sera décrit dans le chapitre concernant ce type de détection.

Après la traversée de la zone d'interaction, les faisceaux quittent l'enceinte en empruntant un long tube cylindrique noirci intérieurement et muni de diaphragmes de 6 mm de diamètre destinés à limiter la pénétration dans l'enceinte de la lumière en provenance de l'extérieur. Ce tube, taillé en biseau à son extrémité, est fermé par une fenêtre en verre collée sur le métal. Cette fenêtre doit être changée régulièrement, le faisceau atomique provoquant le noircissement progressif du verre, au point d'impact ; toutes les tentatives de nettoyage de la fenêtre avec différents solvants se sont révélés infructueuses, les atomes d'énergie égale à 5 keV s'implantant en profondeur dans le verre.

On peut remarquer que le faisceau laser peut être envoyé dans la direction anticolinéaire au faisceau atomique grâce à la présence de cette fenêtre.

2. Déflexion des ions résiduels.

Selon la température de la cellule d'échange de charges, la neutralisation est partielle ou totale. Les ions résiduels dans le faisceau d'atomes neutres émergeant de la cellule sont éliminés à l'entrée de la chambre d'interaction par un petit système de déflexion électrostatique composé par deux plaques, l'une mise à la masse et l'autre portée à une haute tension positive.

3. Mesure de l'intensité du jet atomique.

La mesure de l'intensité du faisceau d'ions direct se fait à la sortie de la chambre four en utilisant un cylindre de Faraday ; un deuxième cylindre de Faraday construit en Inox est aussi utilisé, avec

des précautions supplémentaires, pour mesurer l'intensité du jet d'atomes neutres traversant la chambre d'interaction. Il a été disposé à la sortie du piège à lumière et placé à l'extrémité d'un passage rotatif coulissant Edwards ; il peut ainsi être escamoté à tout moment pour libérer le passage des atomes et de la lumière. Selon la polarisation du cylindre, on peut mesurer soit l'intensité des ions résiduels dans le faisceau neutralisé, soit le courant d'électrons secondaires provoqué par l'impact des ions résiduels et des atomes neutres sur le cylindre. En défléchissant les ions et en supposant qu'un atome ou un ion provoquent l'apparition du même nombre d'électrons secondaires, on peut connaître de manière absolue à l'aide de trois mesures le nombre d'atomes neutres interagissant avec la lumière, par seconde. Le dispositif de polarisation du cylindre de Faraday sera décrit plus précisément dans un paragraphe suivant consacré à l'efficacité de la neutralisation dans le processus d'échange de charges.

E - Optique d'entrée du (ou des) faisceaux laser.

La lumière peut être envoyée par l'extrémité de la chambre d'interaction et se propager ainsi en sens contraire par rapport au jet atomique. Une deuxième possibilité consiste à introduire le faisceau laser sur le trajet du jet d'ions, après la déflexion de celui-ci d'un angle de 10° , à la sortie de la chambre four. La lumière et les atomes se propagent dans ce cas dans le même sens. Le faisceau lumineux est introduit par un hublot latéral situé dans la chambre four au niveau de la première lentille électrostatique et réfléchi par un prisme à réflexion totale dans la direction du jet d'ions défléchi ; les faces du prisme sont traitées anti-reflet et ses angles ont été taillés de manière que le rayon lumineux réfléchi soit aligné avec l'axe du faisceau atomique (Figure 12).

On peut exciter ainsi les atomes colinéairement - la lumière se propageant de la chambre four vers la chambre d'interaction - ou(et) anticolinéairement, la lumière pénétrant dans l'enceinte par la chambre d'interaction. Le deuxième mode d'excitation présente l'avantage par rapport au premier d'autoriser l'utilisation de lumière polarisée circulairement à condition de remplacer le hublot à incidence de Brewster par un hublot perpendiculaire au faisceau laser. En effet, dans le cas d'une excitation colinéaire, les différentes réflexions sur les faces du prisme modifient en général la polarisation du faisceau laser avant son interaction avec les atomes.

F - Alignement des faisceaux lumineux et atomique.

Analyseur de faisceaux.

Le faisceau laser pénètre par le centre d'un hublot diaphragmé par un trou de diamètre 6mm à l'avant de la chambre four et ressort de l'enceinte à l'arrière de la chambre d'interaction en traversant un autre diaphragme de même diamètre. Ces deux diaphragmes sont mécaniquement fixes et toutes les autres ouvertures ou diaphragmes à travers lesquels passe la lumière doivent être alignés par rapport à eux. Cet alignement est réalisé à l'aide d'un viseur optique de grande précision en pointant successivement les différents diaphragmes mobiles de la chambre-four, l'entrée et la sortie de la cellule, les diaphragmes refroidis, etc...

La lumière traversant à présent les différentes ouvertures sans être diaphragmé, il reste à aligner le jet d'ions sur le faisceau laser. On utilise pour cela deux analyseurs de faisceaux : l'un est placé à l'avant de la cellule de neutralisation (sur le trajet des ions, par conséquent) et l'autre à l'arrière de la chambre d'interaction, ce dernier interceptant le faisceau d'atomes neutres.

Les analyseurs de faisceaux DANFYSIK sont des dispositifs électroniques spécialement conçus pour l'exploration des faisceaux de particules chargées. Ils fournissent des renseignements sur l'intensité, la forme et la position du faisceau étudié ; ces renseignements sont directement visualisés sur l'écran d'un oscilloscope connecté à l'analyseur. La partie principale du système est constituée par la sonde elle-même, munie de son électronique de commande. La sonde balaie le faisceau de particules et en intercepte une partie. Le courant collecté est alors transporté, après amplification le cas échéant, jusqu'à l'oscilloscope dont le balayage horizontal est contrôlé par l'unité de commande. On obtient ainsi une image du courant intercepté en fonction du mouvement de la sonde à travers le faisceau, ce qui fournit des renseignements sur la forme du faisceau, son intensité et sa position par rapport à la sonde.

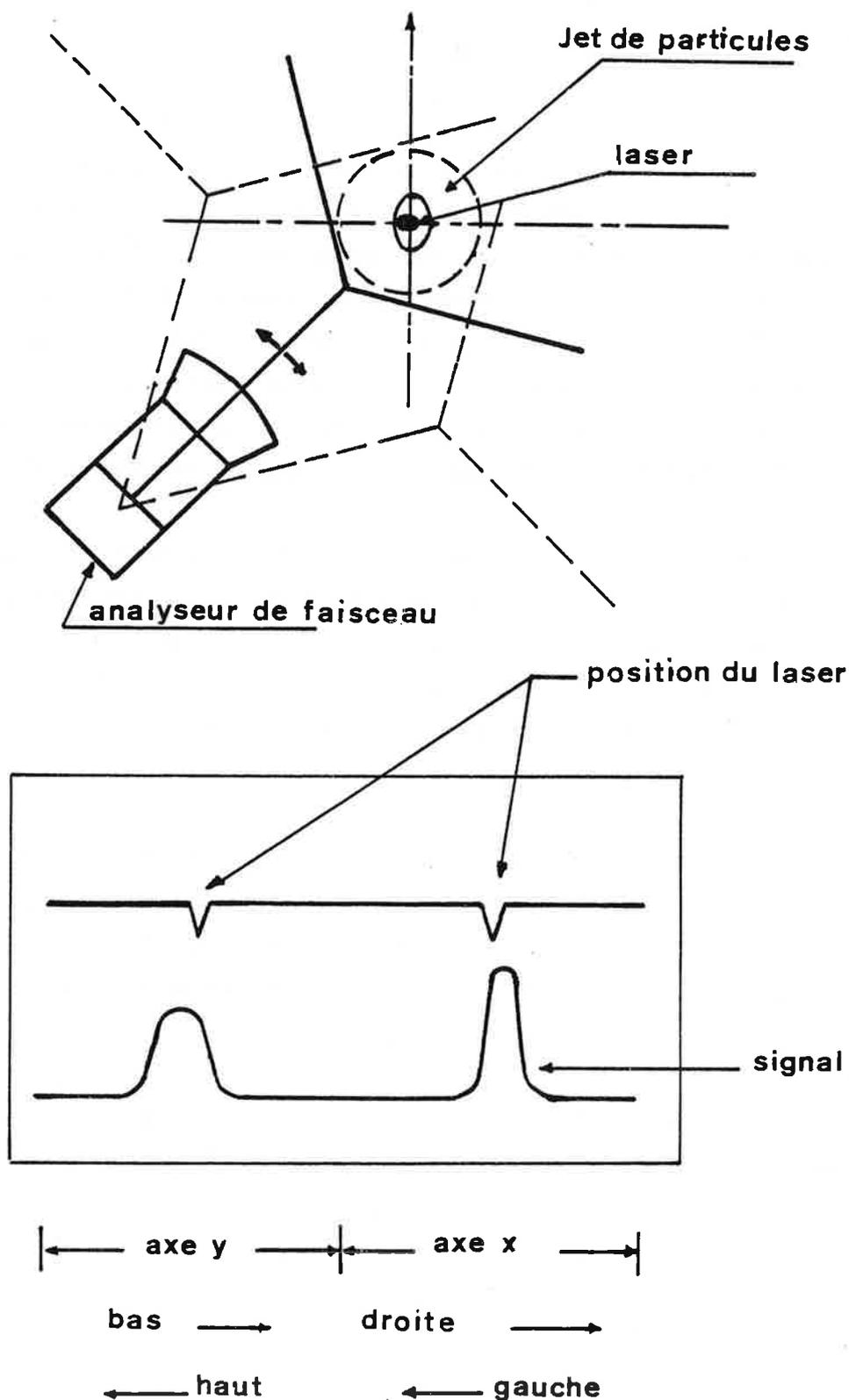


Figure 17 : L'analyseur du faisceau : disposition par rapport au jet de particules et au faisceau laser. Dans l'encart, visualisation des positions relatives du jet et du laser.

Le type d'analyseur de faisceau que nous avons utilisé est formé par deux aiguilles métalliques disposées à 120° environ l'une par rapport à l'autre et oscillant autour de la position d'équilibre avec une amplitude réglable électroniquement. L'amplitude mécanique de ce mouvement est proportionnelle et en phase avec le signal envoyé sur la voie horizontale de l'oscilloscope. Au cours de chaque oscillation, les aiguilles de la sonde explorent la section du faisceau dans des directions à peu près perpendiculaires. Lorsque la sonde est judicieusement disposée à 45° (voir Figure 17), ces directions sont à peu près l'horizontale et la verticale.

Ces analyseurs de faisceaux se sont révélés d'une aide inestimable pour l'alignement sur la lumière laser du faisceau d'ions, puis du faisceau d'atomes neutres. Dans ce dernier cas, le courant collecté par la sonde est un courant d'électrons secondaires provoqué par le bombardement des aiguilles par des atomes à haute énergie. Pour l'observation du faisceau atomique, les ions non neutralisés sont éliminés du jet par déviation électrostatique à l'entrée de la chambre d'interaction.

La procédure expérimentale de réglage est la suivante ; le faisceau laser émergeant de l'enceinte est recueilli par une photodiode et enregistré sur le même oscilloscope que les signaux recueillis par les analyseurs de faisceau. Le faisceau laser étant haché par ces analyseurs de la même façon que les jets d'ions ou d'atomes, l'image recueillie sur l'écran présente deux chûtes d'intensité correspondant à l'occultation de la lumière par les aiguilles (Figure 17). Ce sont ces deux signaux qui servent de repères pour l'alignement du jet d'ions sur le faisceau laser à l'aide des différentes tensions électriques de déflexion et de focalisation qui sont réunies dans un boîtier de commande unique. Cet alignement est réalisé lorsqu'on a obtenu, pour le jet d'ions comme pour le jet neutre, deux images de largeur et de hauteur comparables, centrées sur les signaux fournis par la photodiode.

G - Les lasers et le contrôle de leur fréquence d'émission.

1. Les lasers.

Pour les besoins des expériences qui vont être décrites, deux lasers ont été utilisés. Ce sont des lasers à colorant continus, fonctionnant en régime monomode et continûment balayables sur une plage de fréquence de 30 GHz (Coherent Radiation, modèle 599) pompés, l'un par un laser à argon ionisé, modèle Spectra Physics, 5 W toutes raies, l'autre par un laser à krypton ionisé, modèle Coherent Radiation, 5 W aussi.

Les mesures de structure hyperfine que l'on se propose de faire doivent être très précises : à titre d'exemple, pour mettre en évidence un effet de volume dans les déplacements isotopiques, il faut mesurer ceux-ci avec une précision de l'ordre du mégahertz, alors que les structures étudiées sont plus larges que le gigahertz. Par ailleurs, à cause du petit nombre d'atomes disponibles dans le cas de l'étude d'isotopes très exotiques, des techniques de comptage de photons peuvent s'avérer nécessaires ; chaque point de mesure peut nécessiter alors des temps d'intégration très longs, et l'enregistrement d'une structure complète nécessite plusieurs heures. Il faut donc être capable, simultanément, de balayer finement la fréquence du laser en mesurant avec précision les variations de fréquence au cours d'un balayage ; d'autre part, à une fréquence donnée, le laser doit posséder une excellente stabilité en fréquence à long terme. Il est possible de satisfaire à ces deux conditions en utilisant, pour balayer et asservir en fréquence le laser, un dispositif appelé "sigmamètre", mis au point par P. Juncar et J. Pinard [29, 30]. Ce dispositif équipe l'un des deux lasers et permet de balayer la fréquence du laser pas à pas par sauts de $n \times 0,935$ MHz ($n = 1, 2, 4$ ou 8) et de stabiliser cette fréquence à chaque pas ; il sera décrit un peu plus loin. Le deuxième laser est équipé, à défaut d'un second sigmamètre, de son électronique d'asservissement commerciale et fonctionnera, en général, bloqué sur une fréquence d'émission fixe. Par

rapport au faisceau d'ions, chaque faisceau laser peut se propager colinéairement ou anticolinéairement.

Les atomes peuvent être aussi amenés en résonance avec la lumière laser en balayant la vitesse du jet atomique grâce à la tension d'accélération appliquée à la cellule d'échange de charges ; nous avons en général choisi de balayer la fréquence laser à l'aide du sigmamètre, même lorsque le balayage par tension était également possible. D'autre part, dans les expériences à deux lasers, les fréquences lumineuses doivent être accordées indépendamment l'une de l'autre et le balayage de la vitesse du jet d'ions n'est plus adapté.

Chaque faisceau lumineux, à la sortie du laser, traverse une lame demi-onde à 5890 \AA et un prisme de Glan ou de Glazebrook ; on peut ainsi tourner la polarisation de la lumière en tournant le prisme ou atténuer son intensité sans changer sa polarisation à l'aide de la lame demi-onde.

2. Le sigmamètre.

Une faible partie de la lumière du premier laser de nombre d'onde σ est envoyée dans le sigmamètre. Ce dispositif, pour sa partie optique, consiste en un double interféromètre de Michelson de différence de marche $\delta = 2 \text{ m}$ (Figure 18). Un dépôt métallique réfléchissant introduit sur le trajet de l'un des bras de l'interféromètre produit un déphasage de $\frac{\pi}{2}$ entre les deux composantes, parallèle et perpendiculaire au plan d'incidence, du faisceau incident. 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 placée en avant de l'interféromètre fournit un signal proportionnel à I_0 . Ces trois signaux électriques déterminent

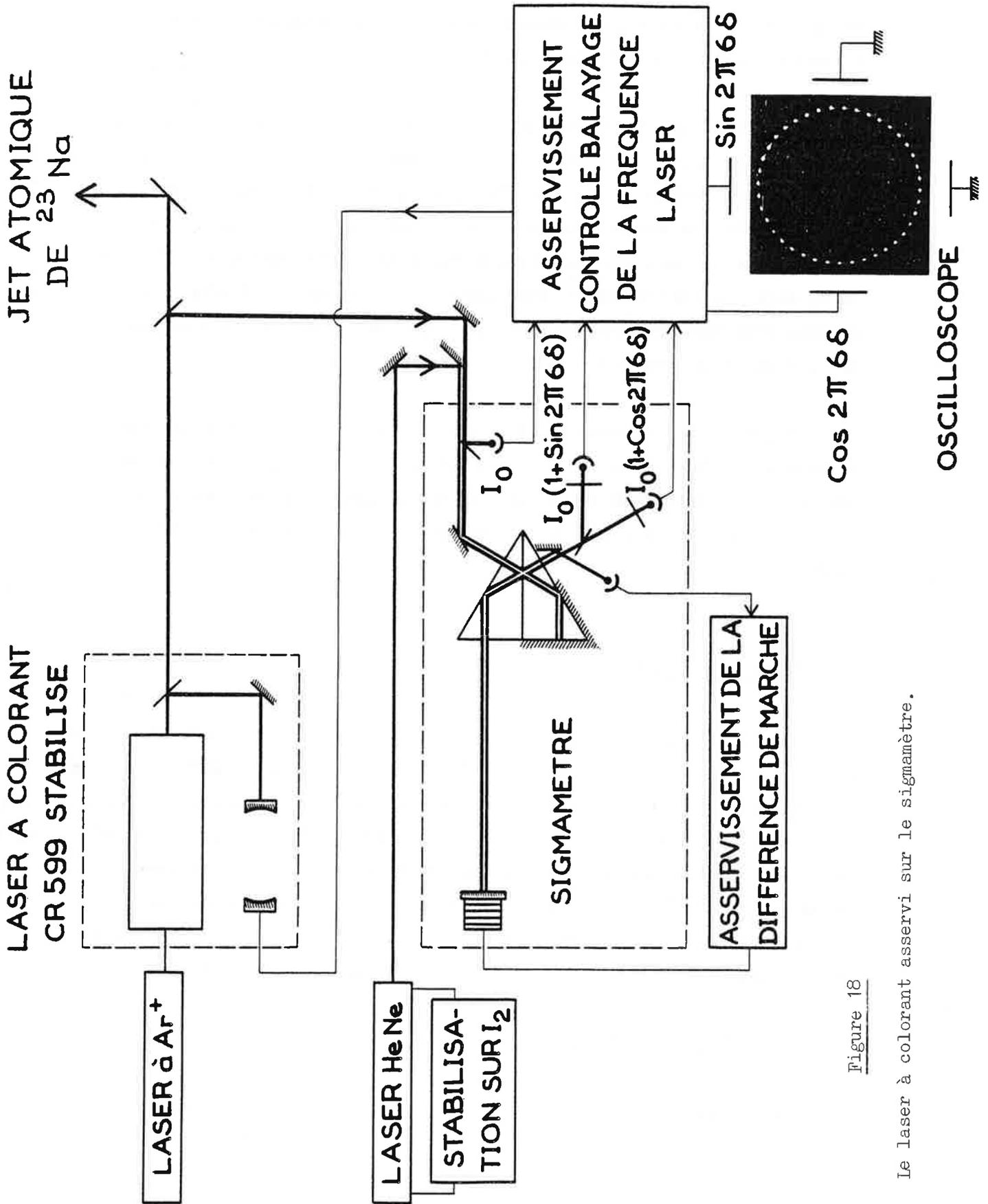


Figure 18

Le laser à colorant asservi sur le sigmamètre.

à 2π près la différence de phase $\Phi = 2\pi\sigma\delta$. 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 la fréquence du laser à colorant CR599. En maintenant la phase Φ égale à la phase électronique Φ_0 , le nombre d'ondes σ de la lumière laser est ainsi stabilisé par le sigmamètre. On peut changer la phase de référence Φ_0 par sauts $\Delta\Phi_0 = \frac{2p\pi}{160}$, où p est un entier, et produire ainsi un balayage du nombre d'ondes σ , donc de la fréquence ν du laser. Ce balayage peut être effectué dans le sens des fréquences croissantes ou décroissantes. A un saut élémentaire $\Delta\Phi_0 = \frac{2\pi}{160}$ correspond un saut du nombre d'ondes $\Delta\sigma = \frac{\Delta\Phi_0}{2\pi\delta} = \frac{1}{32000} \text{ cm}^{-1}$, soit $\Delta\nu = 0,9375 \text{ MHz}$. Pour assurer une bonne stabilité à long terme, il faut évidemment que δ demeure rigoureusement constante. Or une faible élévation de la température ambiante, ou une légère vibration acoustique modifient considérablement la différence de marche optique entre les deux bras de l'interféromètre. Pour maintenir δ constante, on utilise un laser He-Ne asservi sur une raie de l'iode [31]; le faisceau lumineux de ce second laser est envoyé dans le sigmamètre parallèlement au faisceau du laser à colorant. Une photodiode recueille le faisceau du laser He-Ne à la sortie de l'interféromètre et son état d'interférence est analysé. Le sigmamètre fournit alors un signal électrique d'erreur qui permet d'asservir la différence de marche δ de telle façon que l'état d'interférence "vu" par le laser He-Ne reste inchangé dans le temps.

Remarque : La valeur de 2 m donnée plus haut pour la différence de marche δ est une valeur approchée; par construction mécanique, la différence de longueur des deux bras de l'interféromètre est en effet voisine de 1 m. Cette différence de marche a été en réalité remesurée plus précisément, bien que d'une manière indirecte, au cours d'une expérience annexe d'absorption saturée dans une vapeur d'hélium. La structure du niveau fondamental de l'hélium a été enregistrée en balayant le laser à colorant à la vitesse de balayage la plus faible mais par sauts de n pas élémentaires ($n=8$). Ceci nous a permis de mesurer la longueur

de chacun de ces pas élémentaires qui a été trouvée égale à 0,9356 MHz et de vérifier en répétant plusieurs fois la mesure que la fréquence de la lumière laser a une reproductibilité et une stabilité à long terme meilleure que 1 MHz.

H - Efficacité de la neutralisation.

L'efficacité du processus d'échange de charge dans la neutralisation du jet d'ions est en relation étroite avec la densité de la vapeur neutralisante et donc avec la température de la vapeur. Malheureusement, cette température n'est pas connue précisément ; elle est même certainement inférieure de quelques degrés à celle que mesure le thermocouple qui est en contact avec le four. Les courbes d'étalonnage de l'efficacité de la neutralisation en fonction de la température mesurée sur la paroi externe de la cellule qui vont être données à présent doivent donc être considérées avec quelque prudence quand on recherche un étalonnage en fonction de la pression de vapeur.

Comme cela a déjà été dit dans la description de la chambre d'interaction, l'intensité du faisceau atomique émergeant de la cellule est analysée par une cage de Faraday. Celle-ci est représentée dans la Figure 19, elle est constituée par un simple cylindre en Duralumin muni d'une ouverture circulaire de 6 mm de diamètre. Derrière cette ouverture, un anneau circulaire de diamètre identique est isolé du reste de la cage. Cet anneau est relié électriquement à une batterie de piles chimiques et peut être polarisé à ± 45 V. Suivant le signe de cette polarisation, l'anneau attire les électrons secondaires arrachés au fond du cylindre de Faraday par l'impact du jet de particules rapides incident, ou les repousse. On peut ainsi, en mesurant le courant d'électrons secondaires collectés par l'anneau, estimer, à un facteur multiplicatif près (qu'on

suppose ne dépendre que de l'énergie cinétique des particules incidentes et qui est donc identique pour un ion ou un atome incident), l'intensité du jet d'atomes neutres. Pour ce faire, trois mesures sont nécessaires.

Dans une mesure préliminaire, on détermine à une température de la cellule donnée (de préférence pas trop élevée) le courant d'ions résiduels I_0 dans le jet de particules transmis par la cellule (Figure 19a) : pour cette mesure, le cylindre de Faraday est directement relié à un picoampèremètre tandis que l'anneau de garde, polarisé négativement, repousse les électrons secondaires arrachés au métal par les ions et les atomes incidents. On mesure ensuite successivement le courant d'électrons secondaires I_1 provoqué par les atomes neutres et les ions présents dans le faisceau puis le courant d'électrons secondaires I_2 dont les atomes neutres seuls sont responsables, les ions étant défléchis électriquement avant d'atteindre le détecteur. Pour ces deux dernières mesures, le cylindre de Faraday est mis à la masse tandis que l'anneau de garde, polarisé positivement, est relié au picoampèremètre à travers la pile (Figure 19b) ; le courant débité par la pile en l'absence de jet incident (courant de fuite à travers les isolants) dans ce montage est assez faible (de l'ordre du picoampère) pour ne pas perturber la lecture du courant d'électrons secondaires (de l'ordre de la centaine de nanoampères). De ces deux dernières mesures, on peut déduire le courant d'électrons secondaires dus aux seuls ions ; la comparaison de cette quantité avec le courant d'ions mesuré dans l'expérience a) donne alors le nombre ρ d'électrons secondaires arrachés par le choc d'une particule (ion ou atome) d'énergie égale à 5 keV sur le cylindre de Faraday

$$\rho = \frac{I_1 - I_2}{I_0} .$$

D'une expérience à l'autre, ce nombre varie de 2,2 à 1,2 électrons secondaires, probablement à cause d'un dépôt progressif de sodium sur le fond du cylindre de Faraday. Cependant, cette variation est négligeable pour deux mesures faites consécutivement. Sur la Figure 20, on a représenté le pourcentage d'ions résiduels dans le faisceau transmis

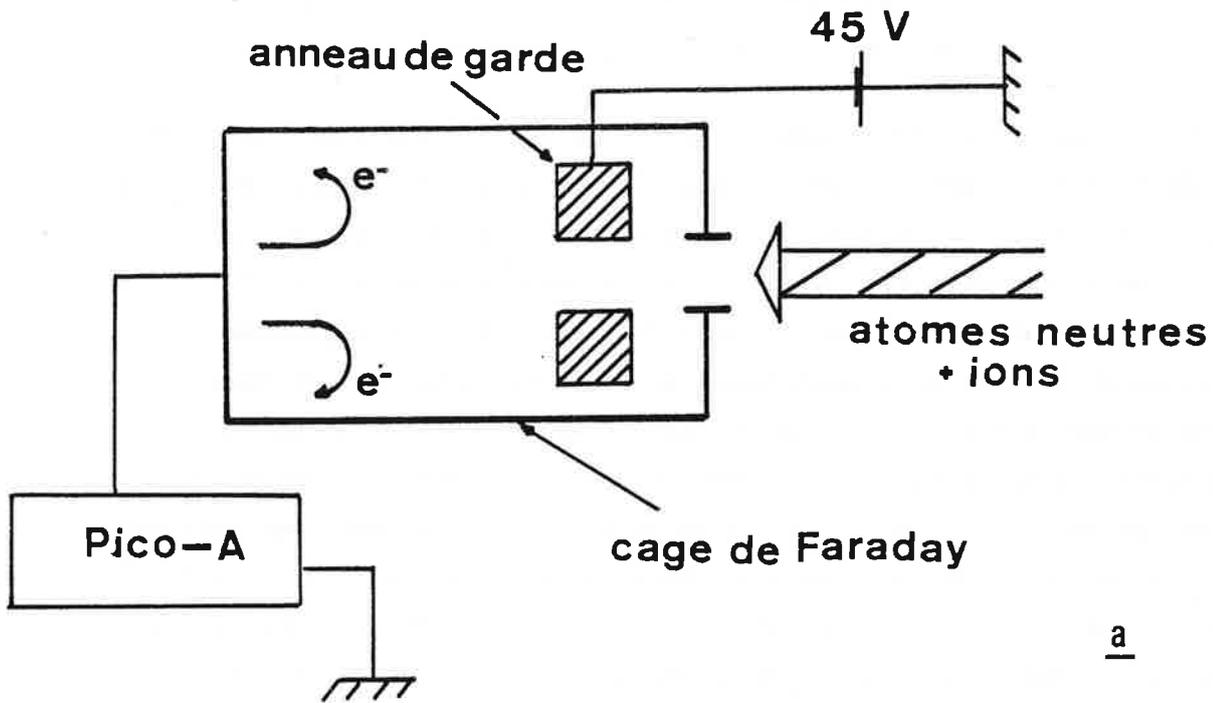
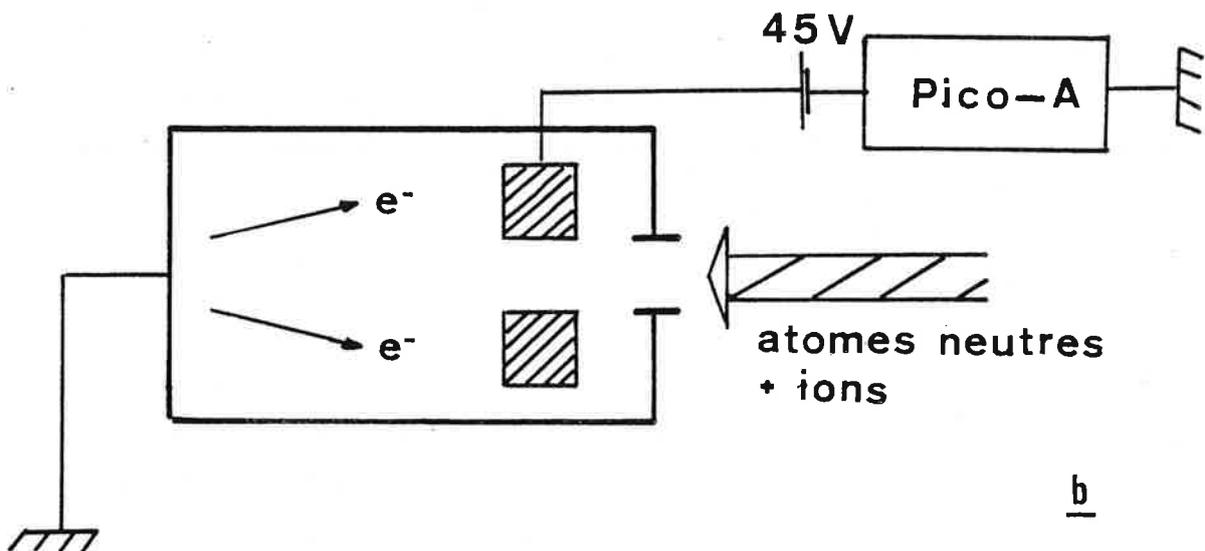
ab

Figure 19

Mesure de l'intensité du jet d'atomes à l'aide du cylindre de Faraday.

par la cellule de neutralisation en fonction de la température de celle-ci. Cette quantité peut être déterminée de deux façons différentes :

- Dans une mesure préalable, on détermine le facteur de transmission géométrique de la cellule de neutralisation, au niveau du cylindre de Faraday. Pour cela, on mesure le courant d'ions "direct", collecté par le premier cylindre de Faraday placé dans la chambre four, puis le courant d'ions transmis par la cellule de neutralisation en l'absence de vapeur de sodium (à température ambiante). Cette mesure donne :

$$T = \frac{\text{courant transmis}}{\text{courant direct}} \cong 0,56 .$$

La moitié des ions créés environ est perdue dans les opérations de collimation et de focalisation. On peut donc tracer une première courbe donnant le rapport du courant d'ions transmis par la cellule à la température T sur le courant d'ions qu'elle transmettrait à froid.

- On peut ainsi déduire le taux de neutralisation à une température donnée T . Le taux de neutralisation est donné par la formule :

$$\tau = I_2 / I_1 .$$

Le pourcentage d'ions résiduels est donc aussi donné par la fonction

$$(1 - \tau) (T^0) .$$

L'accord entre les deux courbes prouve la fiabilité de la détection des atomes neutres par le courant d'électrons secondaires qu'ils engendrent dans le détecteur. On voit aussi sur la même figure que la neutralisation commence à une température voisine de 200° et que la cellule ne transmet plus que des atomes neutres à partir de 300°C . D'autre part, nous avons aussi représenté sur la même figure la fonction $e^{-p(T)/p_0}$ où $p(T)$ est la pression de vapeur à la température T de la cellule et p_0 est la pression déterminée à partir des courbes expérimentales pour laquelle le nombre d'ions détecté tombe à $\frac{1}{e}$ de sa valeur initiale. Le faible désaccord qu'on constate avec les courbes expérimentales peut être expliqué par la remarque qui a déjà été faite que c'est la

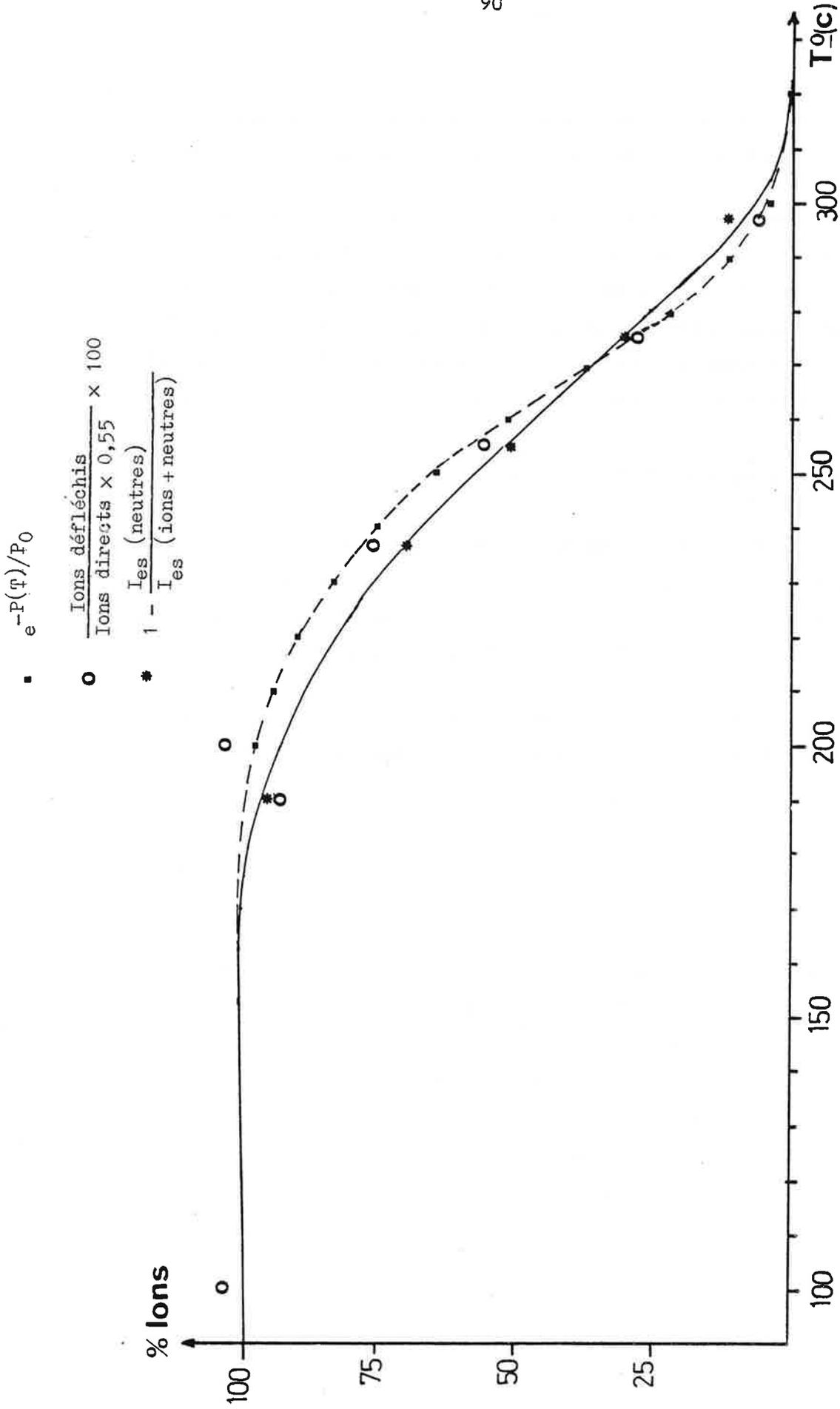


Figure 20 : Pourcentage d'ions résiduels après neutralisation.

température du four et non celle de la vapeur métallique à l'intérieur de la cellule qui est mesurée.

A partir de ces courbes, on peut tenter une estimation grossière de la section efficace σ d'échange de charges entre ions et atomes de sodium. Le rapport du nombre d'ions N non neutralisés sur le nombre d'ions total N_0 transmis en l'absence de vapeur est aussi égal à

$$\frac{N}{N_0} = e^{-\frac{n(T)}{n_0}} = e^{-\frac{p(T) \cdot T_0}{p(T_0) \cdot T}} \approx e^{-\frac{p(T)}{p(T_0)}}$$

si on néglige la variation de la température avec la pression.

Donc :

$$\frac{N}{N_0} \sim e^{-\sigma n(T) \cdot L}$$

où n est la densité atomique à l'intérieur de la cellule, à la température T , et L la longueur de la colonne de vapeur traversée par les ions incidents. Si on suppose que L est égale à la longueur du four chauffant la cellule (~ 10 cm) et que la température de la vapeur est égale à la température mesurée dans le four, on a :

$$\sigma = \frac{1}{n(T_0) \cdot L}$$

où T_0 est la température correspondant à la pression de vapeur p_0 telle qu'elle a été définie plus haut. $n(T_0)$ peut être déduite alors de la loi des gaz parfaits, et on trouve alors :

$$\sigma \approx 14 \cdot 10^{-16} \text{ cm}^2 = 14 \text{ \AA}^2$$

L'ordre de grandeur de la section efficace est correct, mais la valeur attendue est quelque peu supérieure. On surestime certainement dans ce calcul la longueur de vapeur ainsi que la température T_0 de la vapeur. D'autre part, cette vapeur n'est pas homogène en densité comme

on l'a supposé. Une détermination plus rigoureuse de σ doit donc obligatoirement passer par une évaluation du nombre d'atomes par unité de surface rencontrés par le jet d'ions. Cette évaluation peut être réalisée, par exemple, en mesurant l'absorption optique d'un faisceau laser par la vapeur contenue dans la cellule, en fonction de la température.

Chapitre IV

DETECTION DE LA FLUORESCENCEEXCITATION PAR UN LASERA - Transitions étudiées.

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 ($3^2S_{1/2} \longleftrightarrow 3^2P_{3/2}$) de l'atome de sodium. L'état fondamental de l'atome de sodium ($3^2S_{1/2}$) est un état paramagnétique (son moment angulaire J n'est pas nul). Le noyau de l'atome de ^{23}Na possédant un spin nucléaire $I = 3/2$ et un moment magnétique nucléaire positif, 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 21 présente le schéma des niveaux d'énergie hyperfins mis en jeu dans les transitions étudiées ainsi que les composantes hyperfines de ces transitions.

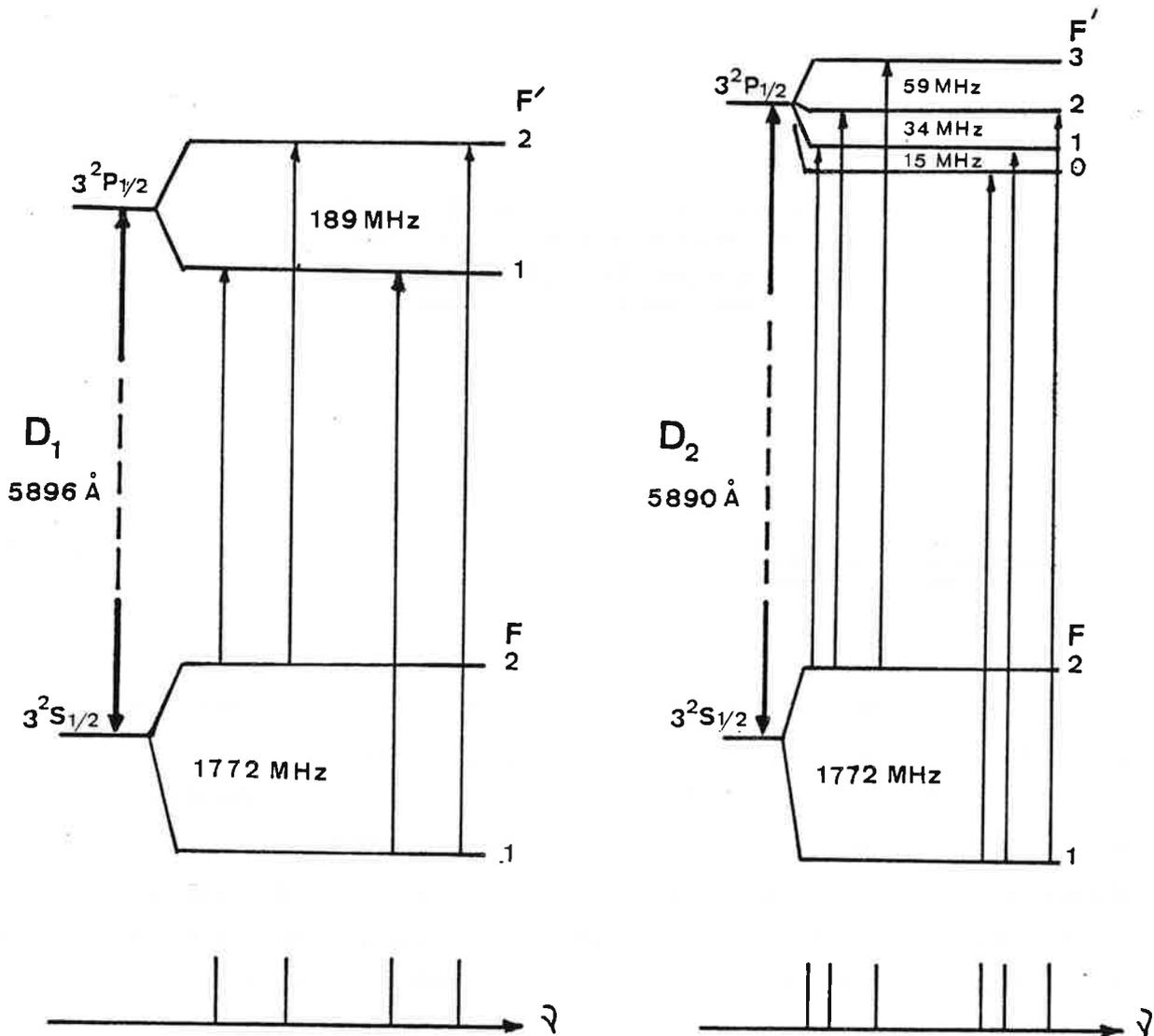


Figure 21

Schéma des niveaux d'énergie hyperfine dans les transitions optiques D₁ et D₂ de ^{23}Na .

Les niveaux hyperfins de l'état fondamental sont notés F , ceux des états excités sont notés F' ; cette convention sera conservée par la suite et sera étendue aux sous-niveaux Zeeman qui seront notés m_F et $m_{F'}$.

La mesure des écarts de fréquence entre les différentes composantes hyperfines d'une même transition pour deux isotopes du même élément 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 les deux isotopes considérés.

Le laser à colorant Rhodamine 6G utilisé permet d'atteindre dans d'excellentes conditions les transitions correspondant à la raie D_1 (5896 Å) et D_2 (5890 Å) du sodium. Les valeurs des écarts hyperfins indiqués sur la figure sont connus avec précision grâce aux techniques de la spectroscopie hertzienne. Les méthodes de double résonance et de croisement de niveaux ont permis de mesurer, outre la structure hyperfine, la durée de vie (ou la largeur naturelle) de l'état excité :

$$\tau = 16 \text{ ns} \quad (\gamma = 10 \text{ MHz}) .$$

De nombreux travaux expérimentaux sont donnés en référence dans un article de revue consacré aux atomes alcalins [32]. On peut noter que la structure hyperfine de l'état fondamental est beaucoup plus grande que celle de l'état excité. Les transitions dipolaires électriques obéissent à la règle de sélection $\Delta F = 0, \pm 1$. Pour une raie D donnée, on observe donc deux groupes de composantes hyperfines (deux composantes pour chaque groupe dans la raie D_1 , trois composantes dans la raie D_2) séparés par l'écart hyperfin de l'état fondamental.

B - Principe de l'expérience.

Le dispositif expérimental utilisé est celui qui a été décrit au Chapitre III. La Figure 22 rappelle les différents éléments du montage.

L'excitation optique du jet rapide est obtenue grâce à un laser à colorant Rhodamine 6G fonctionnant en régime monomode, polarisé rectilignement, pompé par un laser à Argon ionisé ; la fréquence d'émission du laser à colorant est asservie et balayée à l'aide d'un sigmamètre. La vitesse du jet d'ions accéléré et donc du jet d'atomes neutres émergeant de la cellule d'échange de charges est égale à 0,2 mm/nanoseconde*. Pour minimiser les effets du pompage optique, la zone de détection de la fluorescence est rapprochée de la chambre de neutralisation à la distance minimale permise. On peut rappeler ici que la longueur de la zone de détection est 6 cm et celle de la zone d'échange de charge 26 cm. Dans ces conditions matérielles et en raison de l'encombrement relatif de la vanne placée entre les deux chambres, l'écartement entre les centres de ces deux zones ne peut être réduit en deçà de 35 cm.

L'interaction entre les atomes et la lumière est résonnante lorsque la longueur d'onde des photons laser, dans le référentiel des ions en mouvement, coïncide avec une raie de résonance atomique. Il existe donc, comme cela a été mentionné précédemment, deux possibilités pour réaliser l'accord Döppler, soit en faisant varier la vitesse du jet atomique, soit en faisant varier la longueur d'onde du laser exciteur. On a vu dans la description du montage expérimental qu'il est possible de modifier la vitesse des atomes par une post-accélération (ou décélération) appliquée à la cellule d'échange de charges. Disposant du

* Dans une géométrie à faisceaux superposés, le temps d'interaction entre l'onde laser et les atomes devient de l'ordre du temps de vol des atomes à travers l'installation.

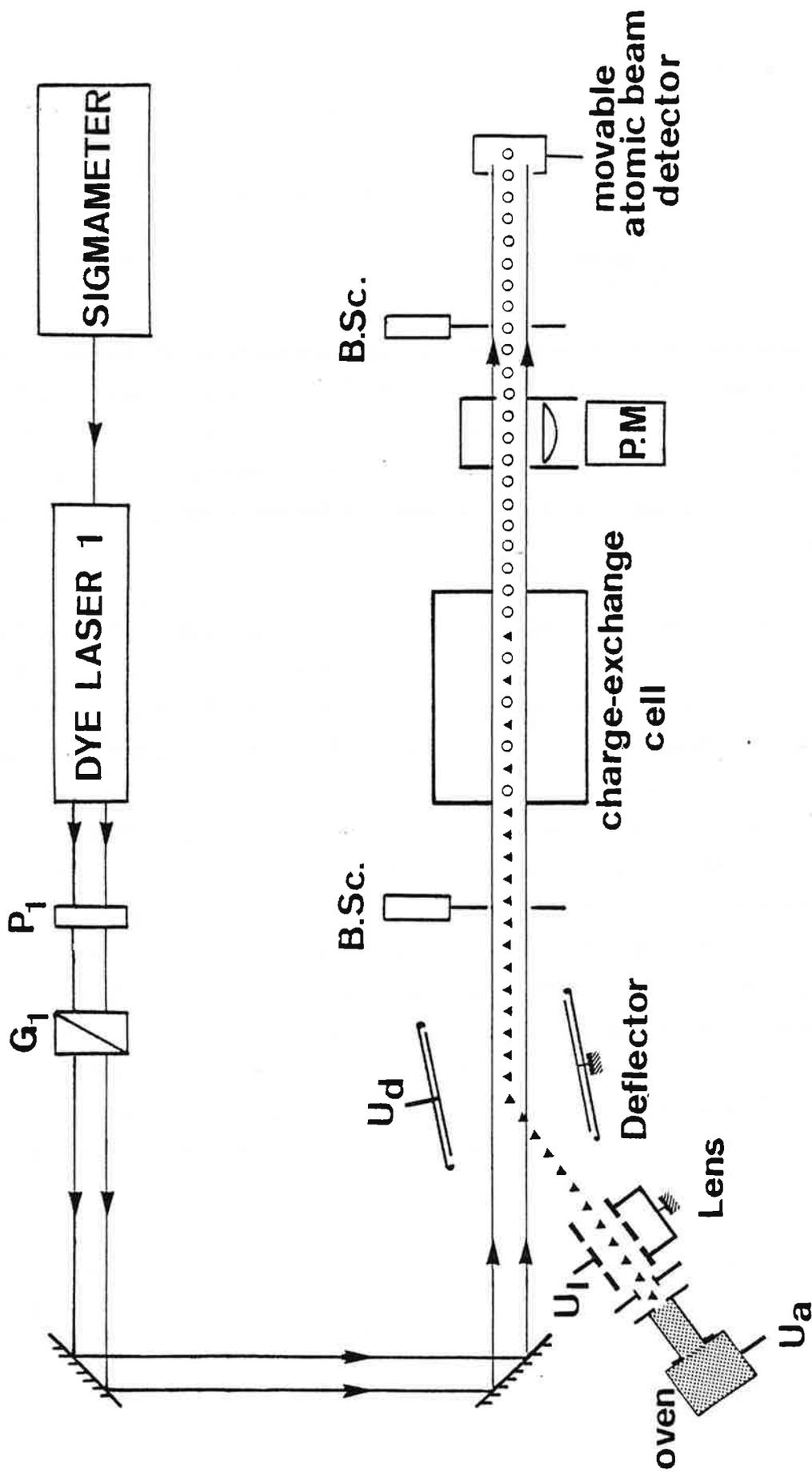


Figure 22 : Vue d'ensemble schématique du dispositif expérimental.

sigmamètre, nous avons préféré à cette méthode le balayage de la fréquence du laser jusqu'à l'accord Döppler avec les atomes.

En appliquant la formule bien connue de l'effet Döppler :

$$\lambda = \lambda_0 \frac{1 - \beta \cos \theta}{\sqrt{1 - \beta^2}}$$

on constate que pour $\theta = 0$ (faisceaux superposés se propageant dans la même direction) la condition de résonance optique est satisfaisante dans le référentiel des atomes lorsque la fréquence lumineuse est supérieure à la fréquence de résonance des atomes au repos de 333,45 GHz, ce qui correspond à un décalage vers les basses longueurs d'ondes de $3,93 \text{ \AA}$.

La puissance disponible à la sortie du laser est de l'ordre de 100 mW et la largeur spectrale du mode laser est inférieure au Mégahertz. Une lame biréfringente demi-onde placée derrière le miroir de sortie du laser à colorant, et suivie d'un prisme de Glazebrook permet de faire varier la puissance laser appliquée au faisceau atomique sans pour autant modifier ni la géométrie du faisceau, ni sa direction de polarisation. Grâce à un jeu de miroirs, le faisceau laser pénètre dans l'enceinte du jet à travers un prisme qui le réfléchit dans l'axe de la voie d'expérience. A l'extrémité de cette voie, le faisceau laser sort de l'enceinte à vide grâce à un hublot sur lequel il est facile de contrôler visuellement la superposition de l'impact des deux faisceaux atomique et lumineux. Par contre, il est difficile de mesurer en cours d'expérience la valeur absolue de la puissance laser effectivement appliquée par suite du noircissement rapide du hublot sous l'impact du faisceau d'ions.

Le faisceau d'ions fourni par l'ioniseur est relativement intense, de l'ordre de $0,1 \mu\text{A}$. L'intensité du jet atomique neutralisé étant de l'ordre de 10^{10} à 10^{11} particules/seconde, il n'a pas été nécessaire d'utiliser des techniques de comptage de photons dans la détection de la fluorescence.

Pour éviter les effets parasites dus au champ magnétique terrestre, comme il apparaîtra par la suite, celui-ci a été compensé le plus soigneusement possible. Pour ce faire, toute la zone d'interaction entre la lumière et le jet atomique a été entourée, à l'extérieur des enceintes, par des boucles de fil électrique, placées dans trois plans perpendiculaires. Les intensités des courants circulant dans ces boucles ont été calculées de manière à annuler le champ terrestre tel qu'il a pu être mesuré au niveau du jet atomique.

C - Enregistrement à faible puissance laser.

1. Structure hyperfine de la raie D_1 .

La Figure 23 représente un enregistrement des deux groupes de composantes hyperfines de la raie D_1 du sodium issues respectivement des niveaux $F=1$ et $F=2$ de l'état fondamental.

Dans cette expérience, la lumière laser est polarisée rectilignement et la puissance mesurée après le prisme de Glazebrook est de $100 \mu\text{W}$, la section du faisceau laser étant de 5 mm^2 environ. La fréquence du laser est balayée par le sigmamètre dont l'électronique fournit directement l'échelle de fréquences. Le faisceau laser et le jet atomique se propagent dans le même sens.

Chacune des composantes hyperfines est accompagnée, du côté des fréquences basses, par une composante satellite indiquée (a). Ces satellites correspondent à l'entrée en résonance avec la lumière d'atomes du jet moins rapides. L'écart spectral entre une raie et son satellite est de l'ordre de 70 MHz, ce qui correspond à une perte d'énergie cinétique de 2eV. Cet écart est sensiblement égal à la différence

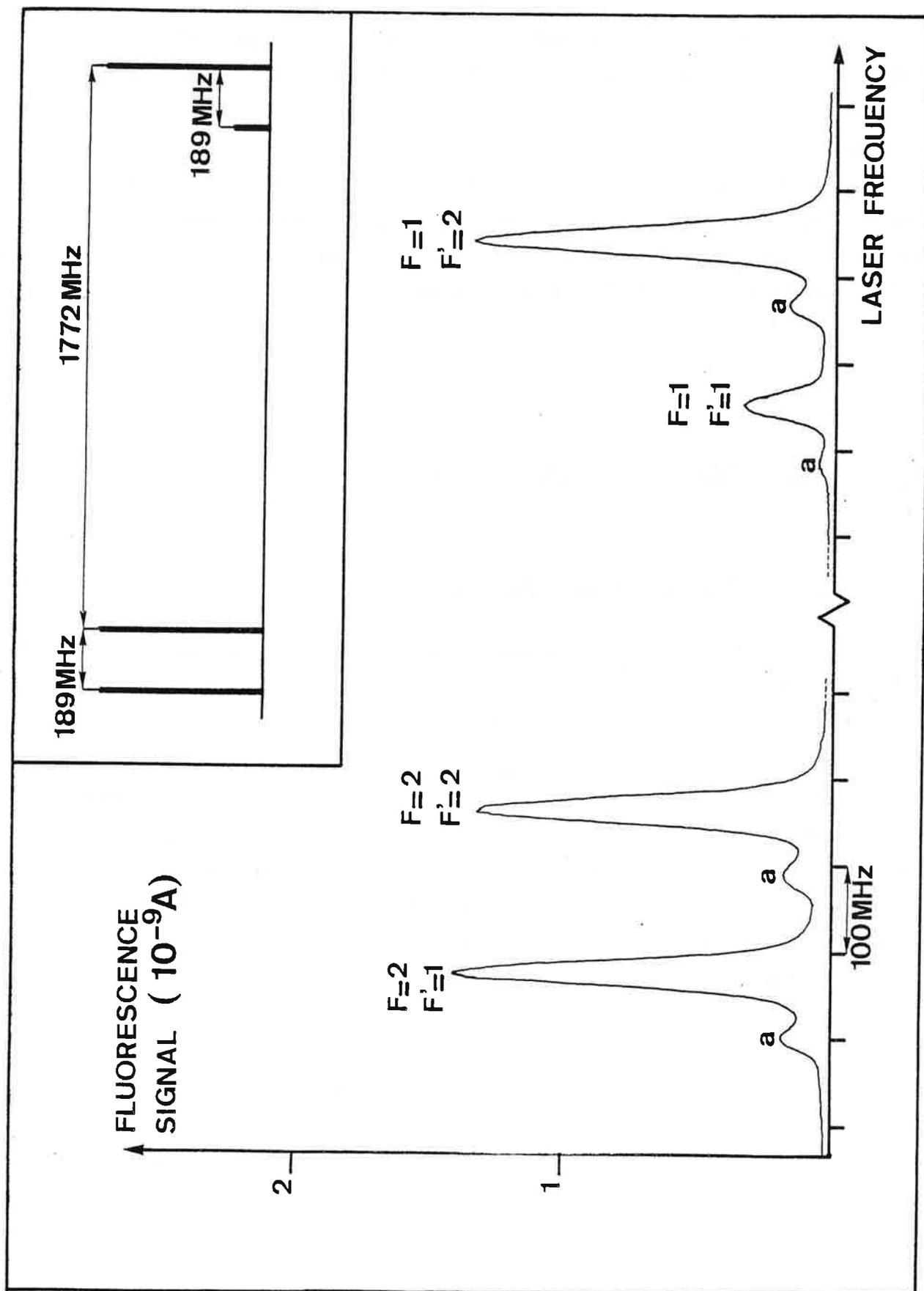


Figure 23 : Spectre de la raie D_1 .
 Le jet atomique est colinéaire au faisceau laser.

d'énergie entre le niveau fondamental $3s$ et le niveau excité $3p$ de l'atome de sodium ($\Delta E = 2,1 \text{ eV}$). Ces atomes ralentis proviennent donc d'ions qui ont été neutralisés via l'état $3p$ (transfert de charges non résonnant).

Cependant, on ne peut pas déduire directement le rapport des sections efficaces d'échange de charges résonnant et non résonnant à partir des intensités relatives de la raie principale et de son satellite. En effet, comme on le verra au Chapitre VIII, les ions neutralisés peuvent également subir un certain nombre de collisions inélastiques avant de quitter la cellule selon la densité de la vapeur neutralisante, ce qui se traduit par une diminution de l'intensité de la raie principale au profit de la raie satellite. Une étude plus précise de l'évolution de l'intensité de ces raies en fonction de la pression de vapeur de sodium neutralisante est nécessaire pour déterminer les valeurs relatives des sections efficaces de neutralisation.

Les intensités relatives observées pour les quatre composantes hyperfines correspondent aux intensités théoriques qui sont insérées dans l'encart de la Figure 23. Les largeurs de raies à mi-hauteur, mesurables sur cet enregistrement à basse puissance, sont de 28 MHz. Elles sont tout à fait comparables aux meilleurs résultats obtenus par Anton et al. [2] sur des jets rapides de sodium. En revanche, comme on peut le remarquer, ces largeurs de raies peuvent paraître surprenantes après la discussion des élargissements de raies en spectroscopie colinéaire du Chapitre II.

En fait, dans ces estimations théoriques, nous avons certainement sous-estimé la dispersion initiale de l'énergie cinétique des ions avant l'accélération en lui attribuant une origine purement thermique. L'élargissement résultant pour le jet d'ions, grâce à l'effet de "compression" des vitesses consécutif à l'accélération, avait été alors estimé à environ 13 MHz pour une température de chauffage du four de sodium de l'ordre de 1200°C .

Partant maintenant en sens inverse de la largeur expérimentale de 28 MHz et après déduction des élargissements dus à tous les autres effets discutés au Chapitre II, on aboutit à une largeur d'environ 250 MHz pour le jet accéléré provenant de la dispersion en énergie initiale. Ceci correspond à une dispersion en énergie initiale de 0,7 eV trop élevée pour être uniquement d'origine thermique ; elle provient probablement de la tension de chauffage de l'ioniseur de l'ordre de 2 V, qui entraîne une certaine incertitude dans la définition de l'énergie cinétique des ions suivant l'endroit du tube de tantale où ils ont été ionisés.

Cette hypothèse est bien confirmée par l'expérience puisqu'on a observé des largeurs de raies croissant très rapidement avec l'intensité du courant de chauffage de l'ioniseur (Figure 24).

2. Structure hyperfine de la raie D_2

La Figure 25 présente la structure complète de la raie D_2 , enregistrée, elle aussi, pour une puissance laser très faible de 100 μ W. A cause de l'élargissement Doppler résiduel, la structure de l'état excité, très serrée, n'est pas complètement résolue : l'intervalle hyperfin entre les niveaux $F'=0$ et $F'=1$, égal à 15 MHz, est inférieur à la résolution limite de l'appareil (~ 28 MHz).

La présence des résonances satellites peut également brouiller une structure hyperfine a priori résolue : en particulier, dans le cas de l'enregistrement présenté en Figure 25, réalisé dans des conditions expérimentales telles que le faisceau laser et le jet atomique se propageaient dans le même sens, la raie satellite de la plus grande des composantes rouges $F=2 \rightarrow F'=3$ est décalée vers les grandes longueurs d'ondes et tombe juste entre les deux composantes $F=2 \rightarrow F'=2$ et $F=2 \rightarrow F'=1$. Cette difficulté est aisément contournée en utilisant des faisceaux se propageant en sens contraire.

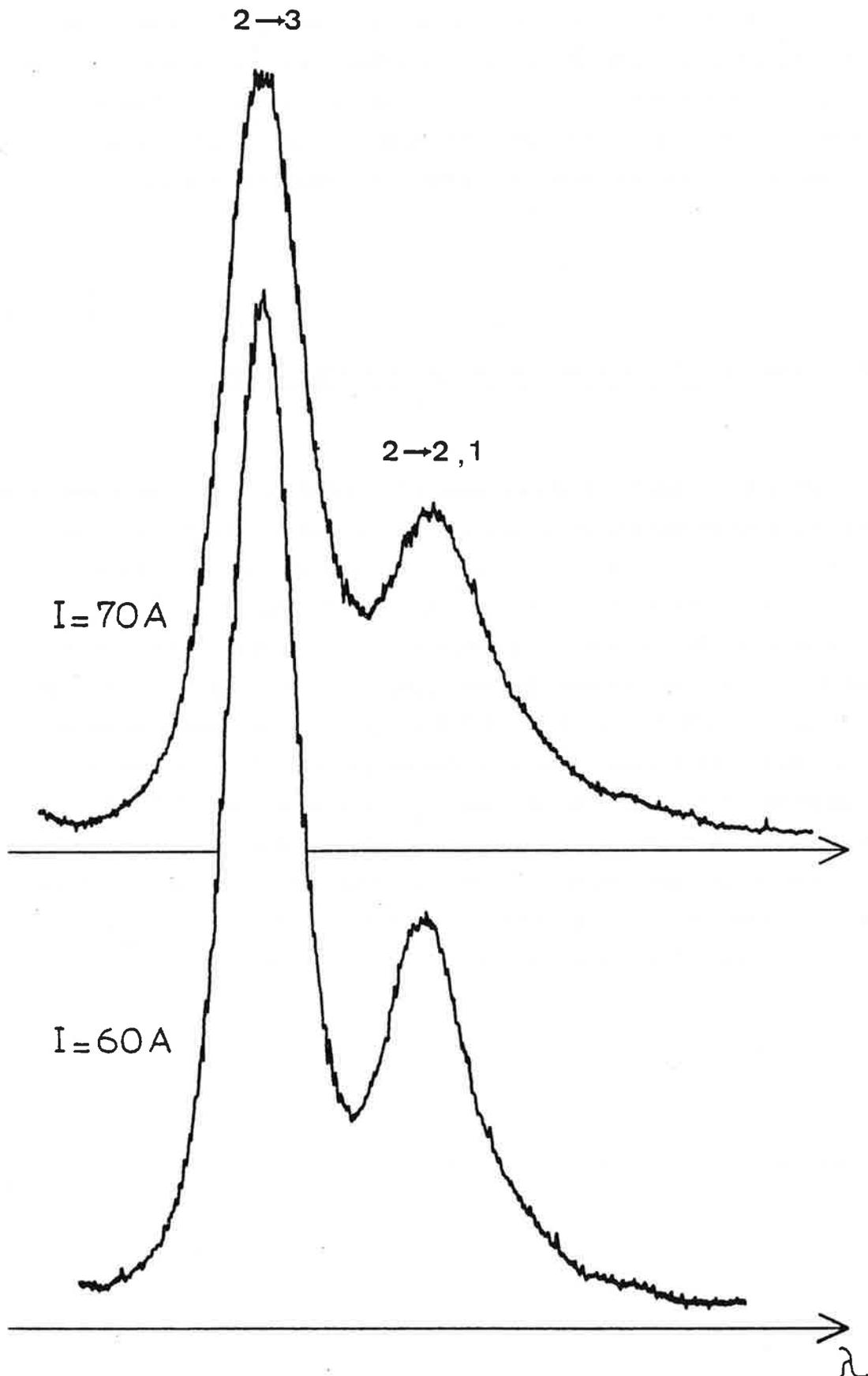


Figure 24 : Elargissement des raies provoqué par l'accroissement du chauffage de l'ioniseur.

Les intensités naturelles des composantes hyperfines de la raie sont représentées avec une échelle arbitraire sur la Figure 25. Les intensités enregistrées sont très similaires, pour cette puissance du laser, indiquant que nous sommes en deçà de la situation limite où le pompage optique va venir perturber les intensités des raies.

D - Effets de l'augmentation de la puissance laser.

On peut classer les transitions hyperfines $F \rightarrow F'$ observées dans les raies de résonance du sodium (ou de n'importe quel autre alcalin) en deux types, suivant que les atomes excités par le rayonnement laser ne peuvent retomber par émission spontanée que dans le niveau initial ou peuvent retomber dans un niveau différent. C'est ce dernier processus qui est appelé pompage optique hyperfin. Ces deux types de transition ont un comportement très différent quand la puissance du rayonnement n'est plus très faible. Ces différences peuvent être illustrées par la transition $F=2 \rightarrow F'=3$ de la raie D_2^* pour le système "fermé" vis à vis du pompage hyperfin et par les transitions hyperfines de la raie D_1 pour le système "ouvert". Un modèle théorique simple permettra de les justifier en établissant des ordres de grandeur relatifs à l'interaction entre les atomes et le faisceau laser.

* La transition $F=1 \rightarrow F'=0$ de la même raie ne subit pas, non plus, les effets du pompage hyperfin ; cette transition est cependant difficilement observable expérimentalement, le pompage optique Zeeman bloquant rapidement le système.

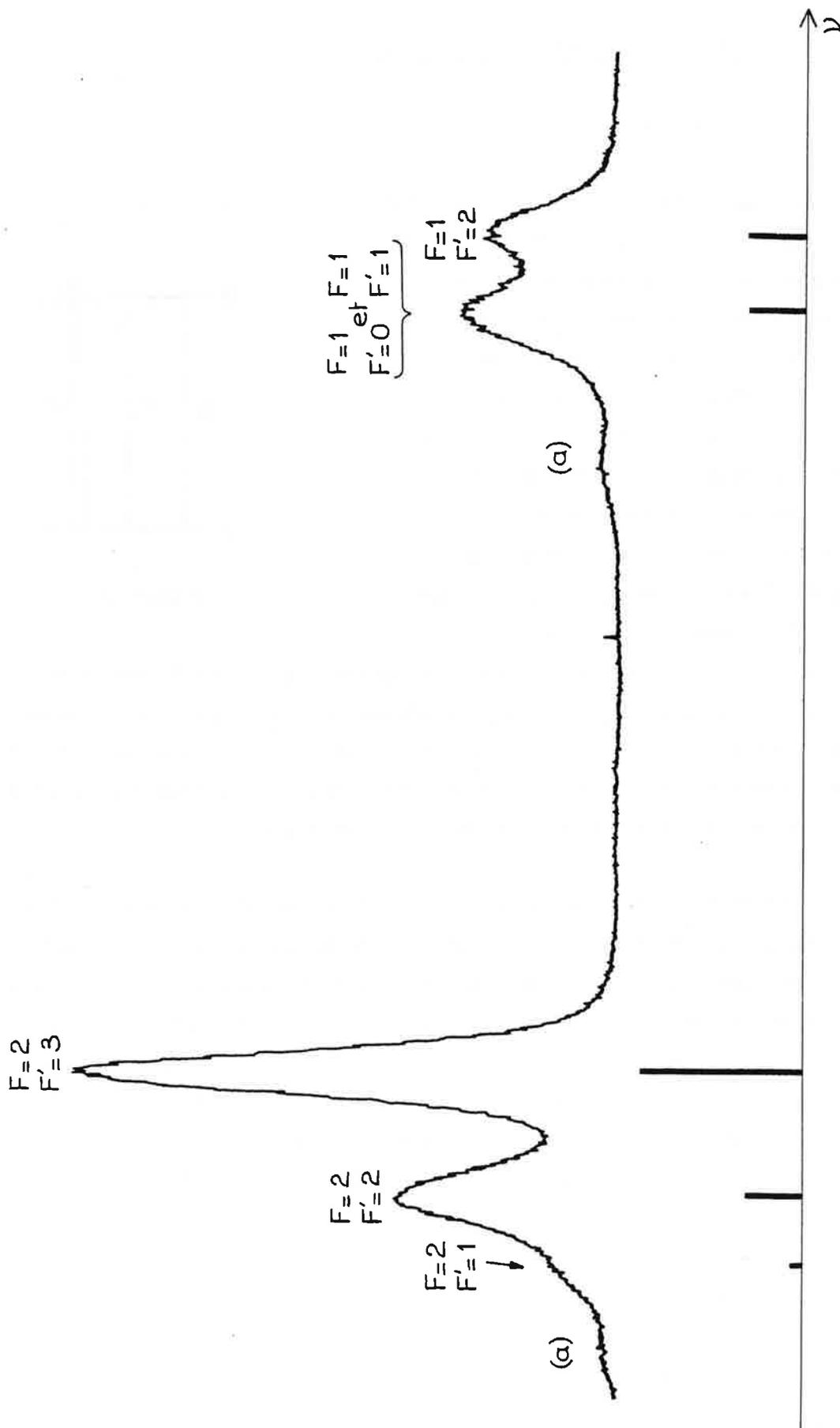


Figure 25 : Spectre de la raie D_2 (le faisceau laser et le jet atomique ont le même sens de propagation).

1. Modèle de l'atome à deux niveaux.

a) Système fermé.

On considère un jet atomique illuminé par un rayonnement laser quasi-résonnant. Le système atomique se compose de deux niveaux a et b séparés par l'énergie $E_a - E_b = \hbar\omega_0$. Le niveau b est le niveau fondamental ; le niveau a est un niveau excité de durée de vie $\tau = \frac{1}{2\pi\gamma}$, γ étant le taux d'émission spontanée de a vers b. Le rayonnement est représenté par l'onde électromagnétique $\vec{E} = \vec{\epsilon} E_0 \cos \omega t$. L'ensemble des N atomes présents dans la zone illuminée est décrit par une matrice densité σ . Les éléments de matrice diagonaux σ_{aa} et σ_{bb} représentent les populations respectives des niveaux a et b ($\sigma_{aa} + \sigma_{bb} = N$). La partie réelle des éléments non diagonaux ($\sigma_{ab} = \sigma_{ba}^*$) est proportionnelle au dipole macroscopique induit par le rayonnement dans le milieu atomique.

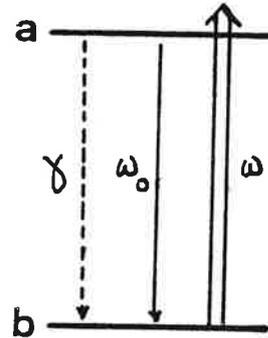


Figure 26

L'évolution dans le temps de la matrice densité σ est décrite par les équations de Bloch optiques du système à deux niveaux. Il serait plus rigoureux de généraliser ces équations de Bloch pour tenir compte des niveaux Zeeman de l'état fondamental et de l'état excité. Mais ces équations plus complètes n'apporteraient rien de fondamental à la compréhension des phénomènes décrits ici et ne peuvent être résolus que numériquement. On peut cependant trouver la description de la résolution numérique du système complet d'équations dans les références [33] et [34].

On se place dans l'approximation du champ tournant ($\omega \sim \omega_0$) et on pose $\sigma_{ab} = \rho_{ab} e^{-i\omega t}$. L'atome à deux niveaux est alors décrit par un système différentiel à coefficients constants :

$$\left. \begin{aligned}
 \dot{\sigma}_{aa} &= -\gamma \sigma_{aa} && -i \frac{\Omega}{2} (\rho_{ab} - \rho_{ba}) \\
 \dot{\sigma}_{bb} &= \gamma \sigma_{aa} && +i \frac{\Omega}{2} (\rho_{ab} - \rho_{ba}) \\
 \dot{\rho}_{ab} &= -\frac{\gamma}{2} \rho_{ab} + i(\omega - \omega_0) \rho_{ab} && -i \frac{\Omega}{2} (\sigma_{aa} - \sigma_{bb}) \\
 \dot{\rho}_{ba} &= \rho_{ab}
 \end{aligned} \right\} \quad (1)$$

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)

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

Les phases relatives de $|a\rangle$ et $|b\rangle$ sont choisies pour que d soit réel. En régime stationnaire ($\dot{\sigma} = 0$), on déduit du système (1) la solution indépendante du temps :

$$\sigma_{aa} = \frac{N}{2} \frac{\frac{\Omega^2}{2}}{(\omega - \omega_0)^2 + \frac{\gamma^2}{4} + \frac{\Omega^2}{2}} \quad (2)$$

$$\rho_{ab} = \frac{N}{2} \frac{\Omega(\omega_0 - \omega + i \frac{\gamma}{2})}{(\omega - \omega_0)^2 + \frac{\gamma^2}{4} + \frac{\Omega^2}{2}} \quad (3)$$

Le paramètre de saturation de la transition est défini par :

$$\alpha = \frac{2 \Omega^2}{\gamma^2} . \quad (4)$$

La population du niveau excité peut se réécrire en fonction de α :

$$\sigma_{aa} = \frac{N}{2} \frac{\alpha \frac{\gamma^2}{4}}{(\omega - \omega_0)^2 + \frac{\gamma^2}{4} (1 + \alpha)} \quad (5)$$

Le résultat de cette équation est bien connu : on trouve une lorentzienne de largeur à mi-hauteur :

$$\gamma' = \gamma (1 + \alpha)^{1/2} . \quad (6)$$

C'est l'élargissement par effet de puissance. A la résonance, on a :

$$N_a = \sigma_{aa} (\omega = \omega_0) = \frac{N}{2} \frac{\alpha}{1 + \alpha} \quad (7)$$

La variation de la population du niveau excité avec α est représentée sur la Figure 27. N_a croît linéairement avec α tant que le paramètre

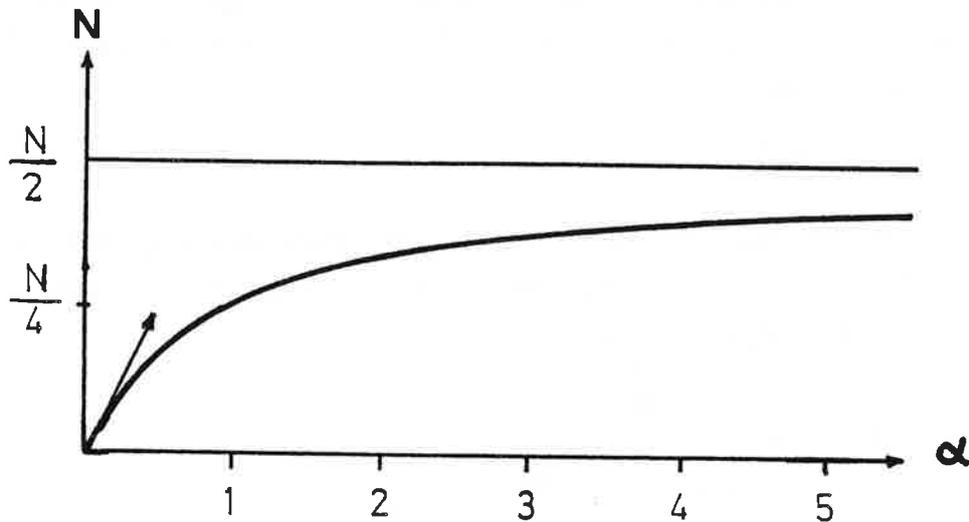


Figure 27

de saturation est petit. Pour α très grand, la moitié des atomes disponibles se retrouvent dans l'état excité. Le début de la saturation est souvent caractérisé par la valeur $\alpha=1$ pour laquelle $N_a = \frac{N}{4}$.

Le carré de la largeur à mi-hauteur γ' dépend linéairement de α ; γ' se réduit à la largeur naturelle γ dans le cas où $\alpha=0$.

La condition pour que le régime stationnaire puisse s'établir est que la durée de l'interaction T soit très grande devant la durée de vie du niveau excité τ . Le nombre moyen de cycles absorption - émission spontanée par atome et par unité de temps est :

$$\langle n_0 \rangle = \frac{N_a / N}{\tau} = \frac{\gamma}{2} \frac{\alpha}{1 + \alpha} \quad (8)$$

Pendant l'interaction, il se produit donc, en moyenne, $\langle n \rangle = \langle n_0 \rangle \cdot T$

émissions spontanées de lumière par atome. Pour que tous les atomes soient excités en moyenne une fois ($\langle n \rangle = 1$), il faut donc que le paramètre de saturation α satisfasse la condition

$$\alpha \cong 2\tau/T \quad . \quad (9)$$

Ordres de grandeur.

Prenons l'exemple d'un jet de sodium rapide de vitesse $v = 2 \cdot 10^5$ m/s éclairé colinéairement par un faisceau laser sur la distance $L = 35$ cm (qui représente la longueur du chemin parcouru par les atomes du centre de la cellule d'échange de charges au centre de la zone de détection). La durée du trajet est : $T = \frac{L}{v} = 1,75 \times 10^{-6}$ s. La durée de vie du niveau de résonance est $\tau = 1,6 \times 10^{-8}$ s. On déduit le rapport : $\frac{T}{\tau} \cong 110$. La valeur du paramètre de saturation correspondant à la condition (9) est alors

$$\alpha \cong 1,8 \cdot 10^{-2} \quad .$$

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 en unités C.G.S. :

$$\Omega^2 = \frac{E_0^2 d^2}{\hbar^2} = \frac{8\pi d^2}{c \hbar^2} \frac{P}{s} \quad ;$$

d'où l'expression de α définie plus haut :

$$\alpha = \frac{2 d^2 E_0^2}{\gamma^2 \hbar^2} = \frac{16\pi d^2 P}{\hbar^2 c \gamma^2 s} \quad .$$

D'autre part, toujours en unités C.G.S. [35] :

$$d^2 = |\langle a | \vec{D} \cdot \vec{\epsilon} | b \rangle|^2 = \frac{\hbar c^3}{64\pi^4 v^3} \gamma \quad .$$

D'où, finalement :

$$\alpha = \frac{\lambda^3}{\pi \hbar c \gamma} \frac{P}{s} \quad .$$

Dans le cas du sodium : $\gamma = 10$ MHz

$$\alpha = 0,3285 \frac{P}{s} \quad \text{avec} \quad \frac{P}{s} \text{ exprimé en mW/cm}^2$$

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

Si l'on considère que la puissance laser au niveau du jet est d'environ 10 mW avec une section droite du faisceau laser de 6 mm \times 6 mm, on trouve :

$$\frac{P}{s} = \frac{10}{(0,6)^2} \cong 28 \text{ mW/cm}^2 \quad \text{d'où} \quad \boxed{\alpha = 9,19}$$

Pour cette valeur de α , l'élargissement par effet de puissance serait :

$$\gamma' = \gamma (1 + \alpha)^{1/2} \quad (\text{équation (6)}) \quad \boxed{\gamma' = 31,9 \text{ MHz}} .$$

Pour cette puissance lumineuse, on peut donc noter que l'élargissement par effet de puissance est de l'ordre de la largeur Döppler pour une transition hyperfine ne présentant pas de pompage hyperfin et réalisant donc un système atomique à deux niveaux (composante hyperfine $F=2 \rightarrow F'=3$ de la raie D_2).

b) Système ouvert.

On suppose maintenant que l'état fondamental du système atomique comporte deux niveaux b et c (Figure 28). Le rayonnement est encore quasi-résonnant vis à vis de la transition $a-b$. On néglige le couplage qu'il introduit entre les niveaux a et c en considérant que $|E_c - E_b| \gg \pi\Omega$. Les atomes excités peuvent retomber par émission spontanée vers les niveaux b et c avec les probabilités respectives γ_b et γ_c . On posera $\gamma = \gamma_b + \gamma_c = \frac{1}{\tau}$.

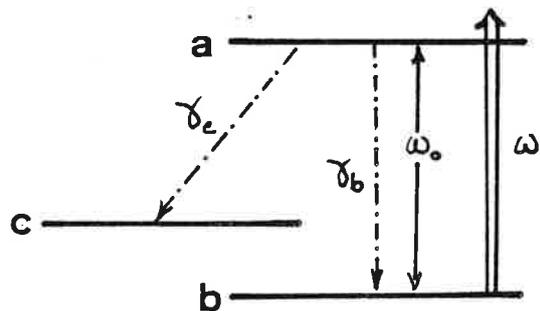


Figure 28 : Système ouvert

L'évolution dans le temps du système atomique est obtenue en résolvant le système d'équation différentielles linéaires à coefficients constants (10) :

$$\left. \begin{aligned}
 \dot{\sigma}_{aa} &= -\gamma \sigma_{aa} & -i \frac{\Omega}{2} (\rho_{ab} - \rho_{ba}) \\
 \dot{\sigma}_{bb} &= \gamma_b \sigma_{aa} & +i \frac{\Omega}{2} (\rho_{ab} - \rho_{ba}) \\
 \dot{\sigma}_{cc} &= \gamma_c \sigma_{aa} \\
 \dot{\rho}_{ab} &= -\frac{\gamma}{2} \rho_{ab} + i(\omega - \omega_0) \rho_{ab} - i \frac{\Omega}{2} (\sigma_{aa} - \sigma_{bb}) \\
 \dot{\rho}_{ba} &= \rho_{ab}^*
 \end{aligned} \right\} \quad (10)$$

On voit immédiatement que les populations en régime stationnaire, c'est-à-dire au bout d'un temps d'interaction infini sont :

$$\sigma_{aa}(\infty) = \sigma_{bb}(\infty) = 0 \quad \text{et} \quad \sigma_{cc}(\infty) = N_0 .$$

Le pompage optique aura accumulé tous les atomes dans le niveau piège c .

La résolution du système (10) correspondant au régime transitoire ne peut être obtenue que par une méthode numérique puisqu'il faut trouver des solutions de la forme :

$$\sigma_{ii}(t) = \sum_{q=1}^4 C_{iq} e^{\lambda_q t} \quad (11)$$

où les λ_q sont les valeurs propres de la matrice 5×5 associée au système (2) et les C_{iq} sont imposés par les conditions initiales

$$\rho_{ab}(0) = \sigma_{aa}(0) = 0 \quad \text{et} \quad \sigma_{bb}(0) = \sigma_{cc}(0) = \frac{N_0}{2} .$$

Toutes les valeurs propres calculées numériquement sont distinctes et à partie réelle négative. Nous avons effectué ce calcul pour la transition hyperfine $F=1 \rightarrow F'=2$, transition pour laquelle il ne se produit pas de pompage Zeeman parallèlement au pompage hyperfin. Les probabilités de transition à partir du niveau supérieur $F'=2$ vers les deux niveaux hyperfins du fondamental sont données avec les notations précédentes :

$$\gamma = \gamma_b + \gamma_c = 2\pi \times 10 \text{ MHz}$$

$$\gamma_b = \gamma_c = \frac{\gamma}{2} \quad (\gamma_b = \gamma_{\rightarrow F=1} \quad \text{et} \quad \gamma_c = \gamma_{\rightarrow F=2})$$

Le signal de fluorescence détecté par le photomultiplicateur est proportionnel à :

$$S = \gamma \int_T^{T+\Delta T} \sigma_{aa}(t) dt = \frac{\gamma}{\gamma_c} \left\{ \sigma_{cc}(T+\Delta T) - \sigma_{cc}(T) \right\} \quad (12)$$

$T = \frac{L}{v}$ est la durée de l'interaction atomes-laser depuis la chambre d'échange de charge jusqu'au détecteur. Dans les expériences utilisant un seul laser que nous décrivons, $L = 35 \text{ cm}$. Dans les expériences avec champs magnétiques qui seront décrites au Chapitre VI, L sera égal à 60 cm . $\Delta T = \frac{\Delta L}{v}$ est la durée du vol des atomes au-dessus du photomultiplicateur. Le diamètre de la lentille collectrice de la lumière de fluorescence est égal à 6 cm . La vitesse du jet est $2 \cdot 10^5 \text{ m/sec.}$, d'où $\Delta T = 0,3 \mu\text{s}$.

Nous avons calculé par intégration numérique le signal de fluorescence pour les deux valeurs de T . Les résultats obtenus sont regroupés dans la Figure 29, pour trois valeurs croissantes de la puissance lumineuse ($\frac{\Omega}{2\pi} = 3 \text{ MHz}$, 10 MHz et 18 MHz).

A puissance faible, la raie présente un profil lorentzien ; sa largeur à mi-hauteur est de l'ordre de 10 MHz pour $L = 35 \text{ cm}$ et $11,3 \text{ MHz}$ pour $L = 60 \text{ cm}$ (le pompage hyperfin est plus important dans ce dernier cas puisque l'interaction est plus longue).

Lorsque la puissance lumineuse augmente, la fluorescence n'augmente plus, bien au contraire, la raie s'inverse : un trou se dessine au centre de la raie, qui se creuse de plus en plus. Les raies s'élargissent considérablement ainsi que le trou central : la fluorescence sur les bords de la raie est plus importante qu'au centre où le laser est exactement accordé sur la fréquence de la transition. Dans le cas de la Figure 29B, le niveau de la fluorescence tombe même à zéro dès que

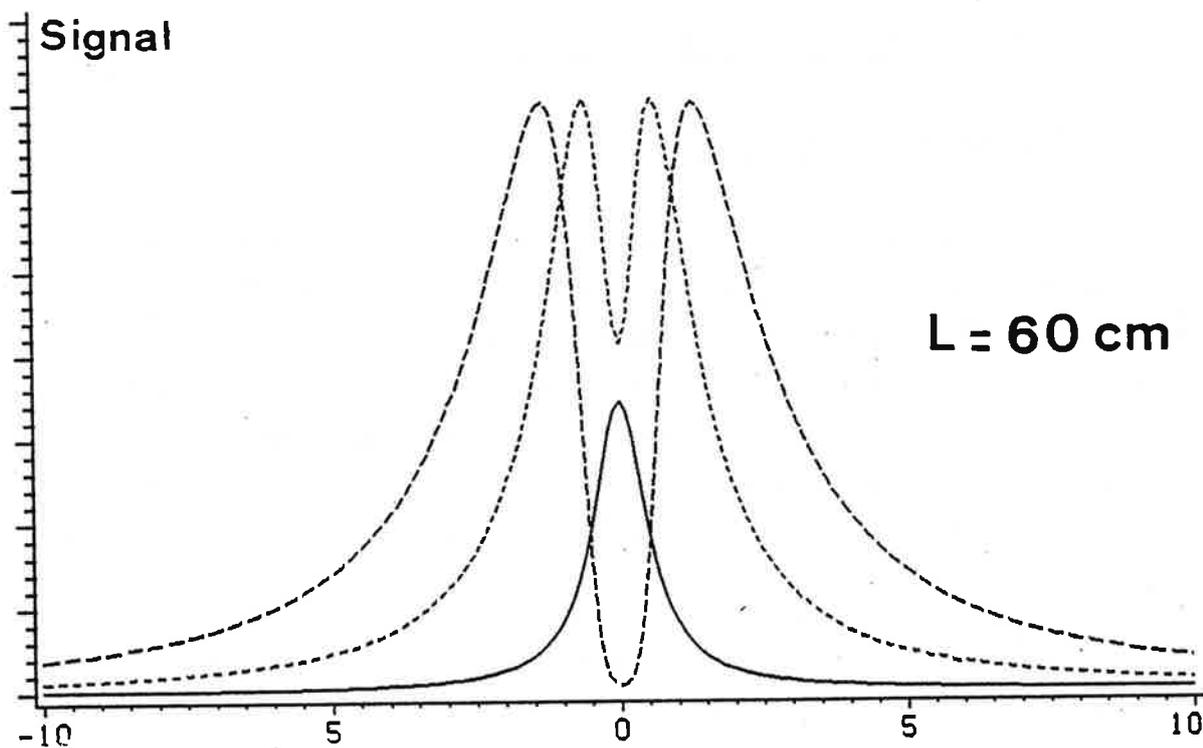
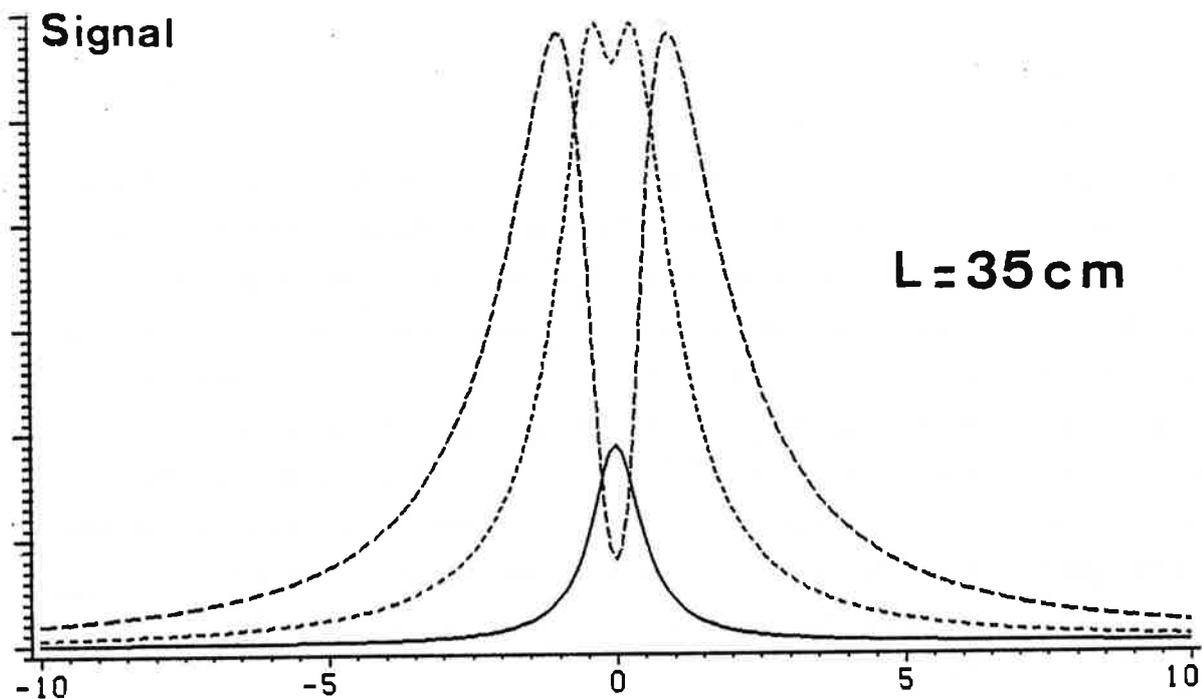


Figure 29 : Signal de fluorescence pour $\frac{\Omega}{2\pi} = 3$ MHz (—) ,
10 MHz (---) ,
18 MHz (.....) .

$\frac{\Omega}{2\pi}$ est égal à la largeur naturelle de la raie : tous les atomes du jet ont été transférés vers le niveau hyperfin non résonnant.

On peut également étudier la population, au niveau de la zone de détection, à partir du niveau piège ($F=2$ dans le cas de la transition $F=1 \rightarrow F'=2$). La population de ce niveau à hauteur de la zone de détection de la fluorescence a été calculée pour les mêmes paramètres. Son évolution en fonction de la puissance lumineuse est représentée en Figure 30. Le profil de raie à faible puissance est encore lorentzien ; la largeur à mi-hauteur est de l'ordre de 10 MHz aussi. Lorsque la puissance lumineuse augmente, on observe une saturation de la raie. La puissance pour laquelle on atteint la "saturation", c'est-à-dire $\sigma_c(T) \approx N_0$ dépend du temps T défini précédemment. Lorsque T croît, cette puissance limite décroît et atteint sa valeur maximale : $\sigma_{cc}(T) = N_0$. L'augmentation de la puissance lumineuse ne fera plus qu'élargir la raie*.

2. Enregistrements des raies D_1 et D_2

a) Composantes de la raie D_1

L'effet d'une puissance lumineuse croissante sur l'intensité et la largeur des composantes hyperfines de la raie D_1 peut être observé sur la Figure 31. Toutes les composantes hyperfines de la raie D_1 peuvent être considérées comme des systèmes ouverts vis à vis du pompage optique hyperfin. Ce pompage transfère les atomes du niveau hyperfin du fondamental résonnant avec la lumière vers l'autre niveau du fondamental. Le comportement des raies en fonction de la puissance lumineuse

* La résolution numérique des équations (10) pour la transition $F=1 \rightarrow F'=1$ a été effectuée dans [34] en tenant compte de la dégénérescence des niveaux hyperfins et de l'effet du champ magnétique terrestre.

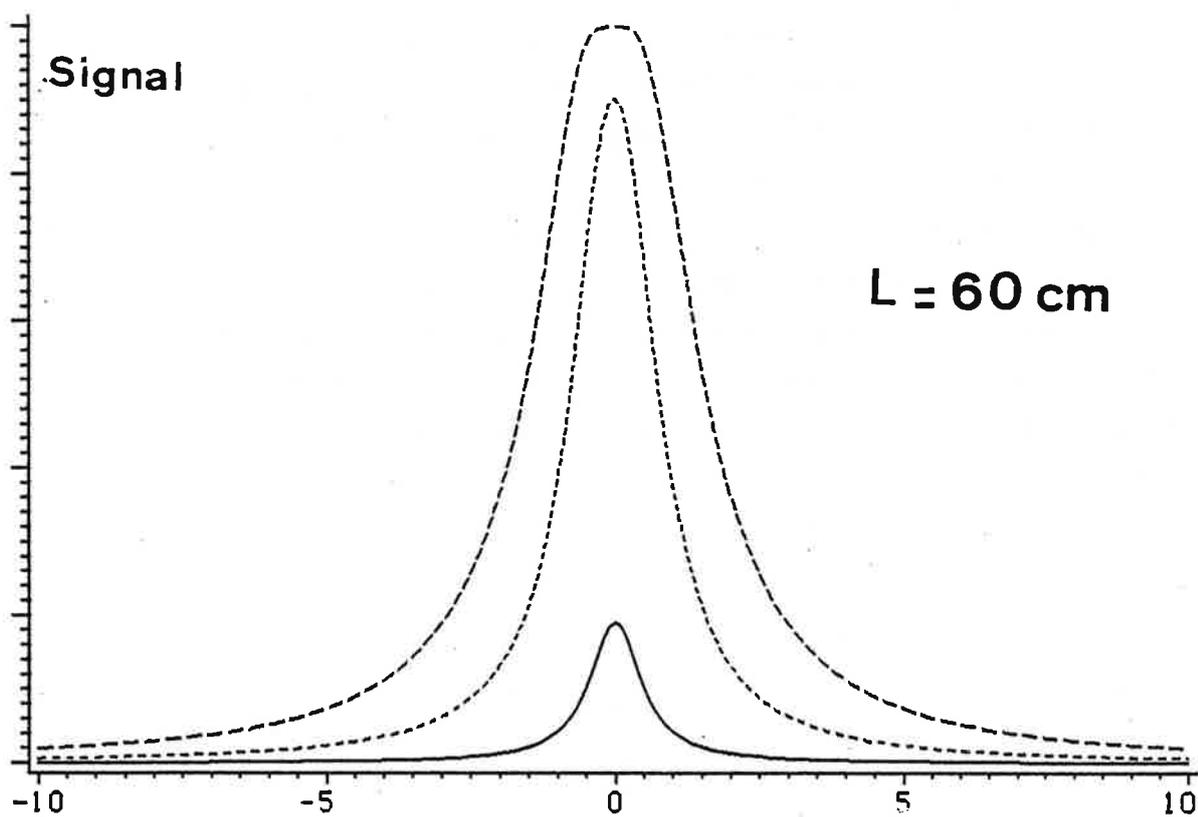
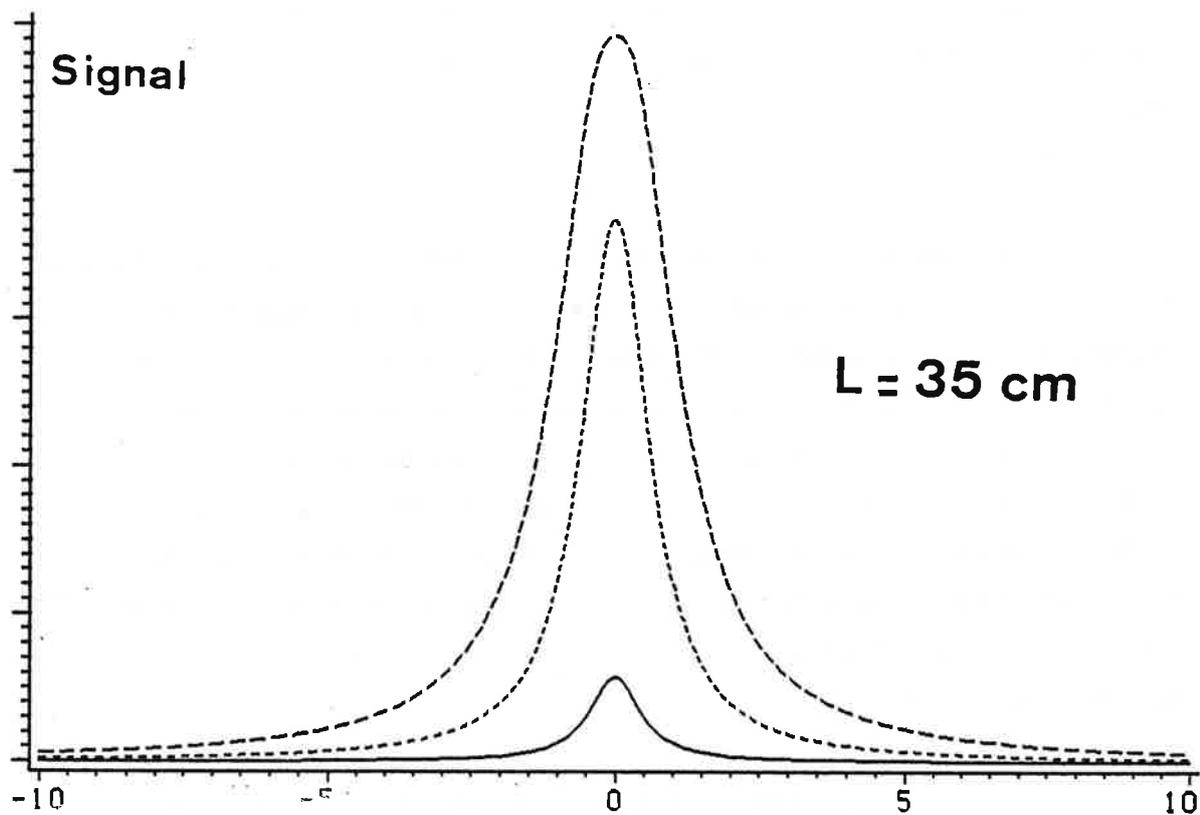


Figure 30 : Population du niveau piège pour les mêmes valeurs de Ω qu'en Figure 29.

est conforme aux courbes théoriques décrites au paragraphe 1b . On observe effectivement un élargissement des raies à des puissances lumineuses trop faibles pour qu'il soit possible de l'attribuer à un élargissement par puissance.

Prenons l'exemple de la transition $F=1 \rightarrow F'=2$. Pour une puissance du laser de $500 \mu\text{W}$, le paramètre de saturation α est égal à 0,46 (Figure 31A) , ce qui permet d'estimer l'élargissement par effet de puissance : la largeur homogène de la transition passe de 10 MHz à 13 MHz environ ; or, tant que cette largeur homogène reste nettement inférieure à la largeur Doppler résiduelle (~ 30 MHz) , une augmentation de la puissance lumineuse devrait produire une augmentation du signal sans élargissement supplémentaire. La largeur de la raie pour cette puissance est cependant de 55 MHz et ne peut donc être expliquée par un élargissement radiatif.

En fait, l'élargissement des raies est une conséquence du pompage hyperfin qui survient durant le vol des atomes de la cellule d'échange de charges à la région de détection. A partir d'une intensité lumineuse telle que tous les atomes ont été excités une fois en moyenne - donc pour α de l'ordre de 10^{-2} -, le pompage hyperfin diminue le nombre d'atomes susceptibles de contribuer à l'excitation au niveau de la lentille qui collecte le signal de fluorescence ; d'autre part, le pompage est plus efficace lorsque le laser est exactement en résonance avec la transition, ce qui entraîne que le nombre d'atomes non transférés sur le niveau piège devient rapidement plus important lorsque la fréquence du laser est légèrement désaccordée, donc sur les ailes de la raie.

Lorsque la puissance du laser augmente, on observe effectivement la formation d'un creux au centre de la raie indiquant que la population du niveau excité, à la résonance, est devenue inférieure à la population du même niveau, hors résonance (Figures 31B et 31C). D'autre part, les raies sont considérablement élargies et finissent même par se chevaucher

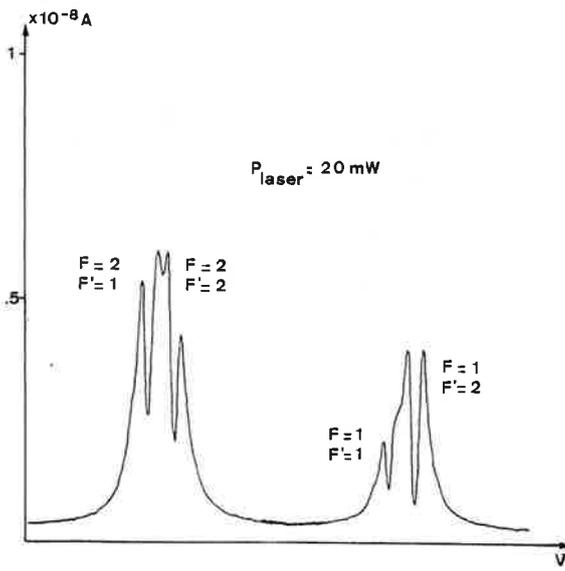
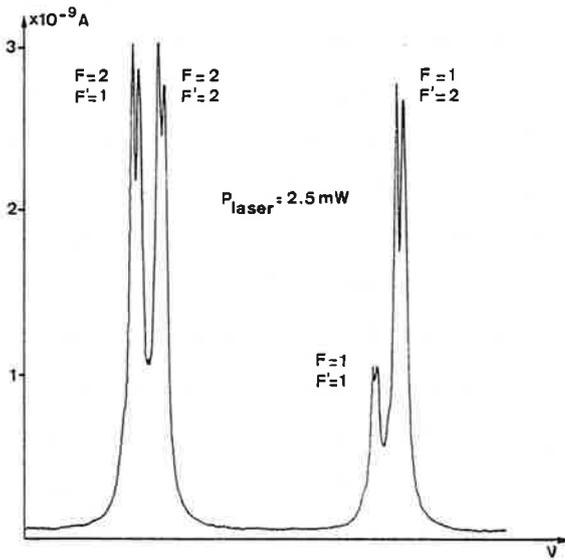
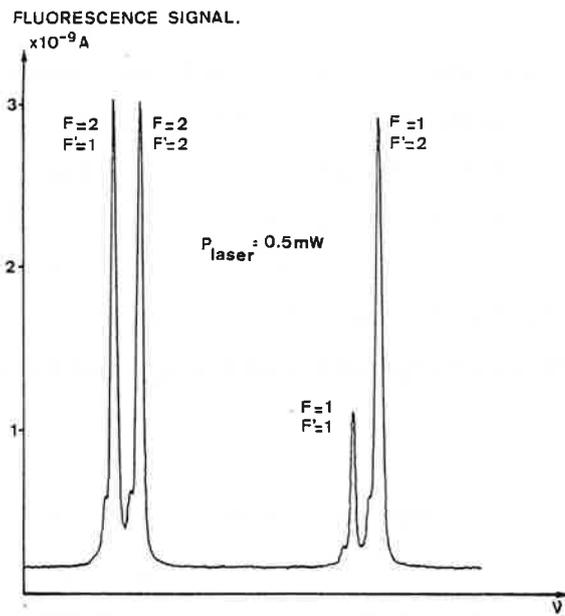


Figure 31 : Effet d'une puissance lumineuse croissante sur les composantes de la raie D_1 .

(Figure 31C), alors que leur intensité, pour une augmentation de la puissance laser dans un rapport 40, a crû d'un facteur inférieur à 2 . Le creux au centre de la raie correspondant à la composante hyperfine $F=1 \rightarrow F'=2$ est plus prononcé que pour les trois autres composantes de la raie D_1 et le signal de fluorescence tombe à zéro pour une intensité lumineuse importante (Figure 31C) indiquant le pompage complet des atomes hors du niveau résonnant avant d'atteindre la zone de détection.

La situation est moins nette dans le cas des trois autres composantes $F=1 \rightarrow F'=1$ et $F=2 \rightarrow F'=1,2$. Pour chacune de ces transitions, il existe un ou deux sous-niveaux Zeeman qui ne peuvent pas être excités par la lumière. Dans le cas de la transition $F=1 \rightarrow F'=1$, la transition entre sous-niveaux Zeeman $m_F=0 \rightarrow m_{F'}=0$ est interdite en excitation π . Les pompages optiques hyperfins et Zeeman transfèrent la population des sous-niveaux Zeeman $m_F = \pm 1$ vers le sous-niveau piège $F=1$, $m_F=0$ et vers le niveau hyperfin du fondamental $F=2$ avec les probabilités indiquées dans le schéma de la Figure 32 . Si le champ magnétique terrestre n'est pas bien compensé sur toute la longueur de l'interaction des atomes avec la lumière, les atomes accumulés dans le sous-niveau $F=1$, $m_F=0$ sont redistribués sur les autres sous-niveaux $F=1$, $m_F = \pm 1$, masquant ainsi en partie l'effet du pompage hyperfin. Cette explication est aussi valable dans le cas de la transition $F=2 \rightarrow F'=2$. Pour la transition $F=2 \rightarrow F'=1$, il y a deux sous-niveaux pièges : $F=2$, $m_F = \pm 2$.

Sur la Figure 31C, en raison d'une compensation du champ magnétique terrestre imparfaite, les dépressions au centre des raies sont moins prononcées pour ces trois composantes que pour la composante $F=1 \rightarrow F'=2$ pour laquelle tous les sous-niveaux Zeeman participent à l'excitation.

b) Composantes de la raie D_2 .

Le phénomène de pompage hyperfin se manifeste également dans les enregistrements de la raie D_2 , à l'exception de la composante $F=2 \rightarrow F'=3$ pour laquelle l'émission spontanée ne peut avoir lieu qu'en direction du niveau hyperfin de départ. Cette composante devient donc rapidement prépondérante quand la puissance lumineuse augmente.

La largeur de la composante $F=2 \rightarrow F'=3$ croît beaucoup moins vite avec la puissance du laser que les composantes de la raie D_1 à cause de l'absence du pompage hyperfin (on retrouve un système fermé). Tant que la largeur en fréquence γ'' calculée au paragraphe précédent est inférieure à la largeur Döppler ($\Delta v_{\text{Döppler}} \sim 30 \text{ MHz}$), la largeur en fréquence est déterminée par la largeur Döppler et l'augmentation de l'intensité lumineuse produit une augmentation du signal de fluorescence sans élargissement (Figure 33). Lorsque γ'' devient de l'ordre de $\Delta v_{\text{Döppler}}$ tous les atomes du jet peuvent être excités par la lumière ; le signal de fluorescence atteint son amplitude maximale avec une largeur légèrement supérieure à la largeur Döppler, convolution d'une courbe gaussienne et d'une lorentzienne de largeur comparable. Quand on augmente la puissance du laser au delà de 10 mW, γ'' devient supérieure à la largeur Döppler, l'intensité de la raie n'augmente plus et elle s'élargit uniquement. Le coefficient de saturation α pour cette puissance de 10 mW est égal à 9 et la largeur homogène théorique d'environ 32 MHz, donc de l'ordre de la largeur Döppler. Les deux autres composantes adjacentes disparaissent devant la composante $F=2 \rightarrow F'=3$. Lorsque le laser est accordé sur cette dernière, la lumière de fluorescence est émise en régime stationnaire et le jet atomique est illuminé sur toute la longueur de l'interaction avec la lumière.

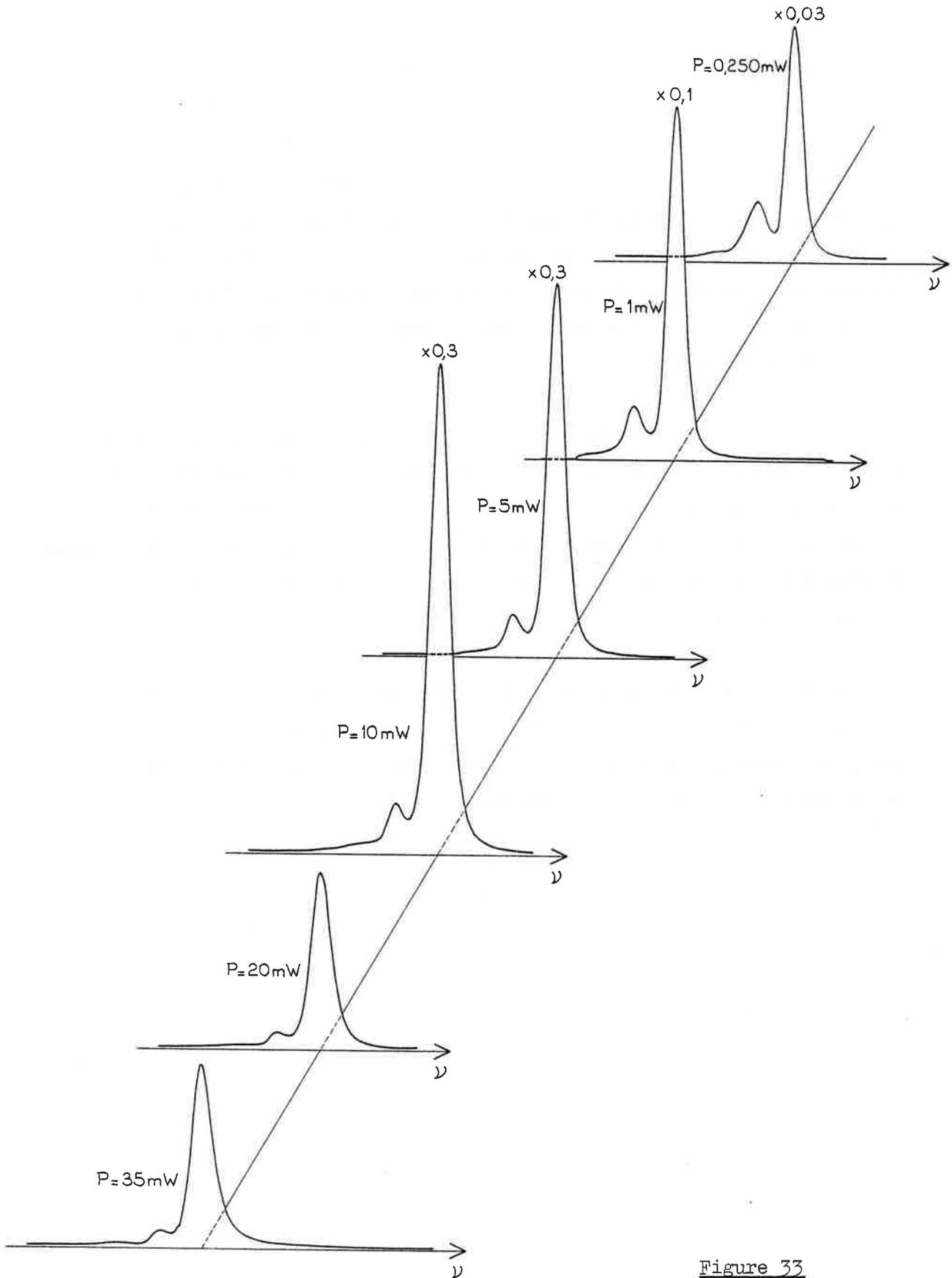


Figure 33

Effet d'une puissance lumineuse croissante sur les composantes "rouges"
 ($F=2 \rightarrow 1, 2, 3$) de la raie D_2 .

E - Conclusion.

Dans son principe, l'excitation colinéaire offre de grandes possibilités pour des expériences spectroscopiques à haute résolution et sensibilité, puisqu'elle amène simultanément en résonance avec la lumière tous les atomes du jet. La meilleure sensibilité dans la détection de la fluorescence est obtenue lorsque le pompage optique hyperfin n'intervient pas.

En revanche, la sensibilité est limitée par ce pompage lorsque les atomes possèdent une structure hyperfine dans l'état fondamental. En effet le pompage hyperfin retire les atomes du niveau résonnant avec la lumière laser en quelques cycles absorption - émission spontanée ; le signal de fluorescence total se réduit donc alors à quelques photons par atome.

Dans le chapitre suivant, on montrera que l'excitation du jet atomique par un second laser, également colinéaire, permet de tirer avantageusement parti du pompage optique hyperfin pour détecter dans de meilleures conditions les résonances optiques.

CHAPITRE V

DETECTION DE LA FLUORESCENCEEXCITATION PAR DEUX LASERS

Le chapitre précédent se concluait sur la nécessité d'éviter les effets secondaires dus au pompage optique hyperfin dans le cas des atomes dotés d'une structure hyperfine dans leur état fondamental.

Vialle et Duong proposèrent d'en tirer parti, plutôt que le subir, en détectant les résonances optiques à l'aide d'un deuxième laser colinéaire au jet atomique [36]. Ce deuxième laser agit alors comme un détecteur du processus de pompage optique.

C'est la mise en oeuvre expérimentale de la méthode proposée qui est décrite ici. Sa sensibilité sera comparée à la méthode de détection de la fluorescence induite par un seul laser qui a été décrite au chapitre IV.

A. PRINCIPE DE LA METHODE

On se propose de détecter les effets du pompage optique induits par un premier laser A en utilisant un second laser B, tous les deux alignés sur le jet atomique (figure 34.a).

On suppose que le niveau inférieur se décompose en deux sous-niveaux seulement, également peuplés, indicés i et j . Chacun de ces sous-niveaux peut être relié au sous-niveau excité e (figure 34.b). En revanche, le sous-niveau excité f n'est connecté qu'au sous-niveau i de l'état fondamental (la transition $j \rightarrow f$ est interdite).

En l'absence du laser A, on accorde dans une première étape la fréquence du laser B sur la transition $i \rightarrow f$, en détectant le signal de fluorescence émis spontanément par les atomes. Cette fréquence est ensuite maintenue bloquée sur cette transition.

Le pompage optique est effectué alors par le laser A, colinéaire au laser B et au jet atomique. Quand la fréquence du laser A est accordée sur la transition $i \rightarrow e$, les atomes sont transférés par pompage optique vers le niveau j et l'intensité du signal de fluorescence détecté décroît. En revanche, lorsque le laser A est accordé sur la transition $j \rightarrow e$, le pompage optique ramène des atomes vers le niveau i , résonnant avec le laser B et l'intensité du signal détecté augmente. On observe donc des résonances soit négative soit positive superposées à un fond constant, (figure 34.c).

La puissance du laser A peut être modérée mais sa fréquence doit être balayable sur un large domaine. Pour le laser B en revanche, on a intérêt à avoir une puissance importante pour augmenter le signal de fluorescence sans toutefois dépasser la limite au-delà de laquelle la fluorescence n'augmente pratiquement plus, c'est-à-dire lorsque l'élargissement par effet de puissance devient comparable à la largeur Doppler.

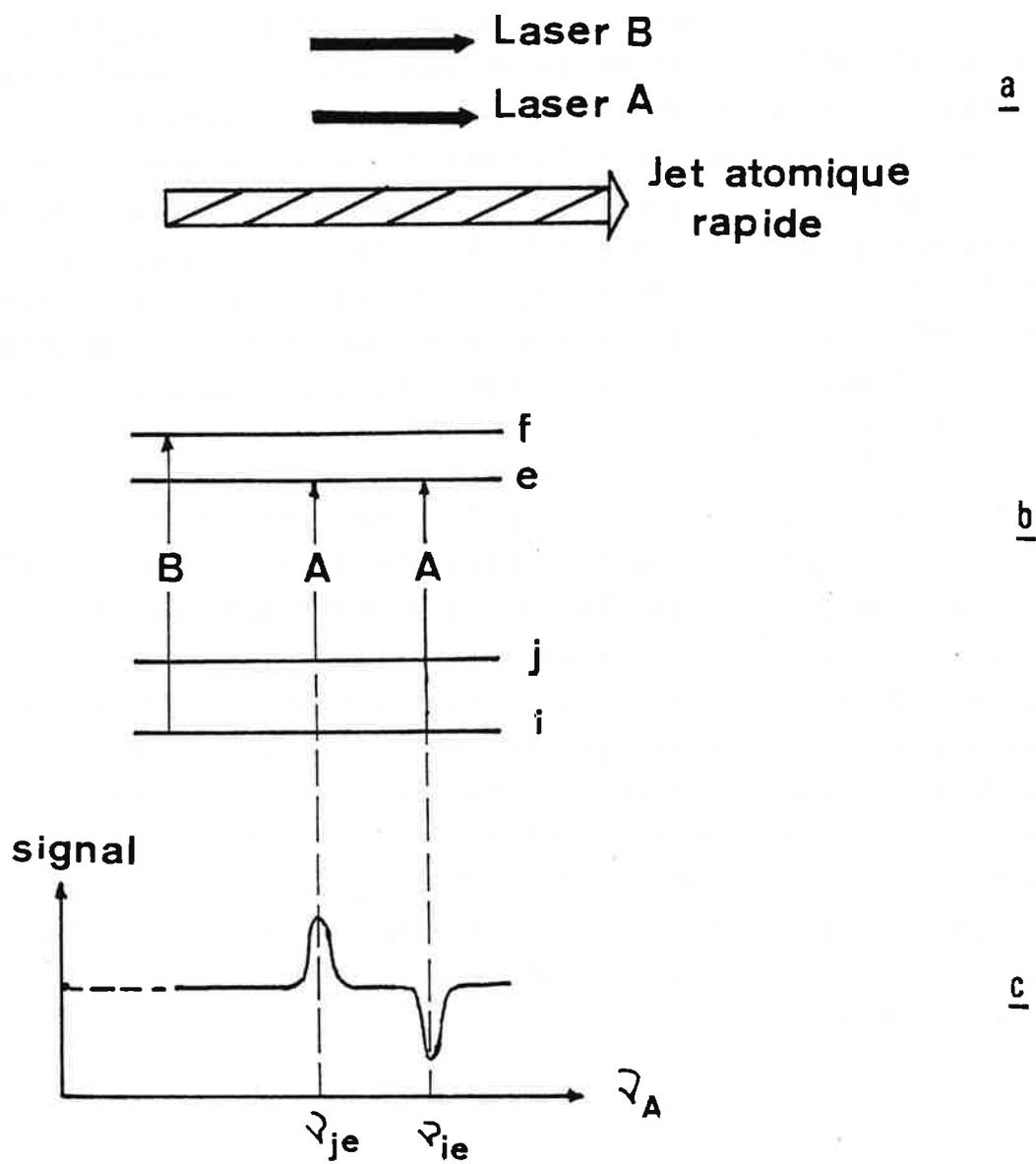


Figure 34

Principe de la méthode de détection du pompage optique hyperfin.

Pour qu'une transition i (ou j) $\rightarrow e$ soit détectable, il suffit que le niveau excité e puisse se désexciter par émission spontanée vers le sous-niveau fondamental i .

Dans l'expérience que nous avons réalisée, la fréquence du laser fixe B est bloquée en permanence sur la transition hyperfine $F=2 \rightarrow F'=3$ de la raie D_2 du Sodium. Comme on l'a déjà vu, cette transition n'est pas soumise au pompage optique hyperfin et elle peut être saturée sans problème. Le deuxième laser, polarisé rectilignement et de puissance modérée, est piloté par un sigmamètre qui assure le balayage de sa fréquence à travers toute la structure des raies D_1 ou D_2 . Les deux lasers peuvent être colinéaires ou anticolinéaires ; on peut, de plus, modifier les polarisations respectives des deux lasers et les rendre soit parallèles soit orthogonales.

La méthode qui vient d'être décrite est similaire dans son principe à la spectroscopie d'absorption saturée en vol sur jet d'ions rapides développée par Beguin et al. Toutefois, à la différence de la méthode que nous proposons, comme leurs expériences sont réalisées sur des jets d'ions atomiques ou moléculaires, le même laser peut servir au pompage optique et à la détection de celui-ci dans deux zones d'interaction distinctes et successives, décalées en tension de ΔV [37-39]. C'est ce décalage en tension qui, en modifiant la vitesse des ions de façon contrôlable entre les deux zones permet un balayage par effet Döppler de la fréquence apparente vue par les atomes.

B. RESULTATS EXPERIMENTAUX

Lorsque le laser de fréquence variable est accordé sur les transitions $F=2 \rightarrow F'=1,2$ de la raie D_1 , le pompage optique hyperfin transfère les atomes du niveau résonnant vers l'autre niveau hyperfin non résonnant. La population du niveau $F=2$ diminue en conséquence ; le signal de fluorescence induit par le laser fixe décroît aussi puisqu'il est proportionnel à la population de ce niveau. On enregistre alors une résonance négative.

Lorsque ce sont les transitions $F=1 \rightarrow F'=1,2$ qui sont excitées, le pompage ramène les atomes du niveau $F=1$ vers le niveau $F=2$ résonnant avec le laser fixe : le signal de fluorescence augmente et on enregistre des résonances positives.

En conclusion, la raie D_1 se présentera sous la forme de deux composantes positives et deux composantes négatives.

La figure 35 reproduit un enregistrement de la raie D_1 effectué à forte puissance pour le laser fixe ; il montre les deux groupes de composantes équidistantes, les composantes "rouges" (côté basses fréquences) étant négatives et les "bleues" (côté hautes fréquences) positives.

On peut prédire de la même manière que la raie D_2 se présentera sous la forme de deux composantes négatives correspondant aux transitions hyperfines $F=2 \rightarrow F'=1,2$ et trois composantes positives correspondant à $F=2 \rightarrow F'=3$ et $F=1 \rightarrow F'=1,2$. Un enregistrement de la structure complète de la raie D_2 est représenté en figure 36. On peut dès à présent noter que les transitions $F=2 \rightarrow F'=1,2,3$ sont bien résolues, ce qui n'est pas le cas dans les expériences à un seul laser.

Dans cette méthode, les raies satellites n'apparaissent pas car elles correspondent à des atomes appartenant à une classe de vitesses qui est hors résonance avec le laser fixe.

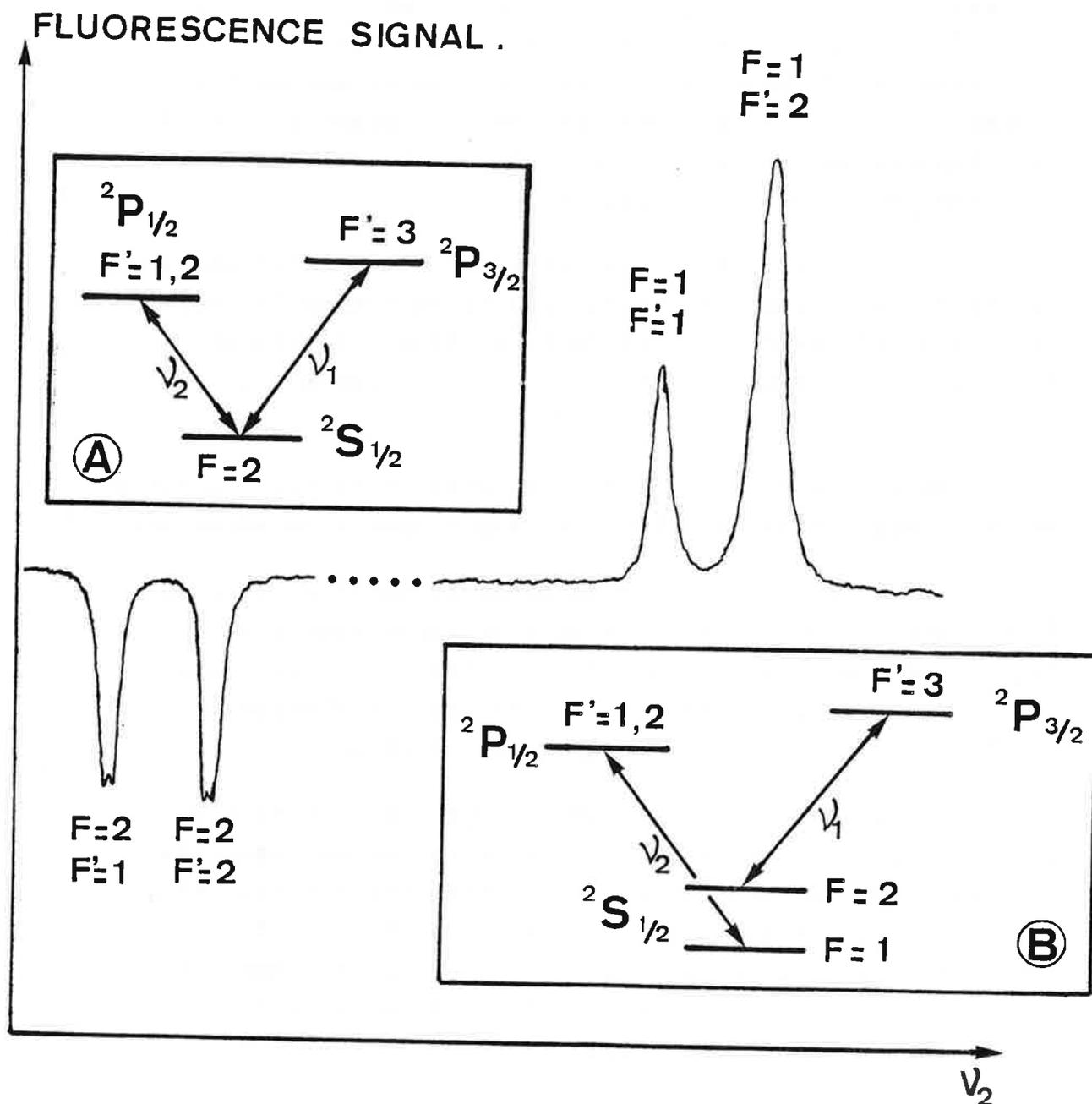


Figure 35

Spectre de fluorescence de la raie D_1 observé lorsque deux lasers colinéaires interagissent avec le faisceau d'atomes.

(10^{-7} A)

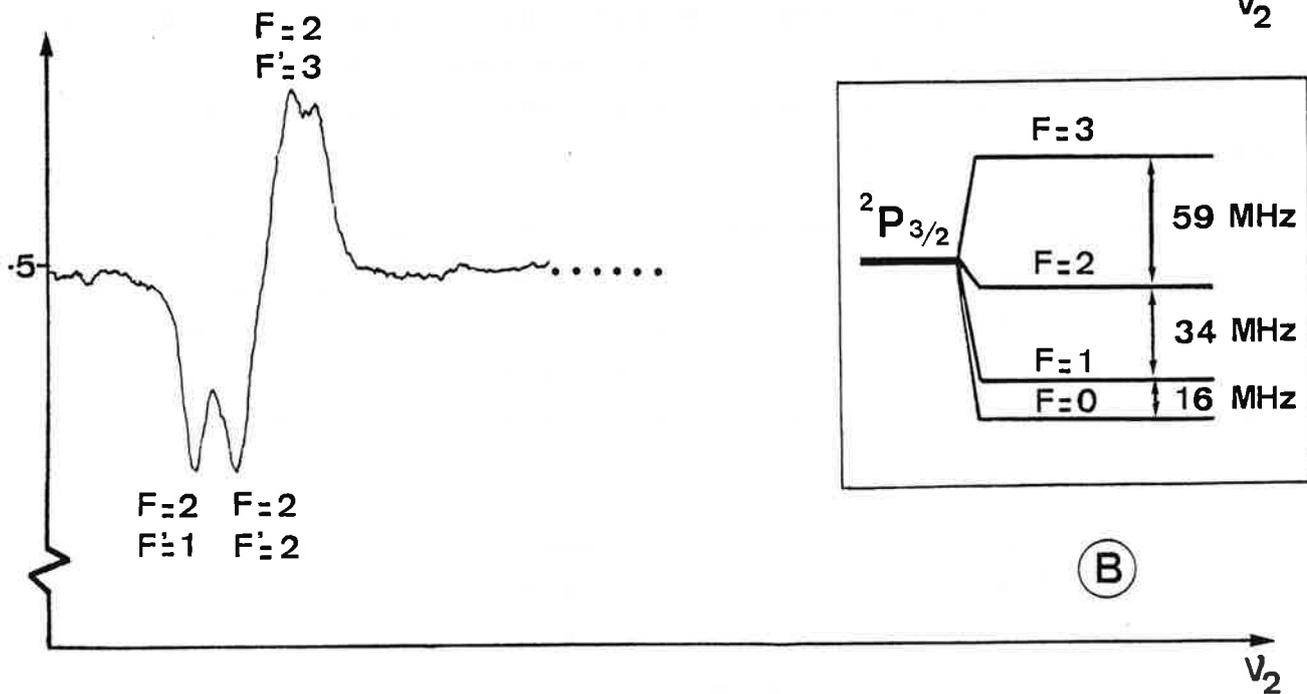
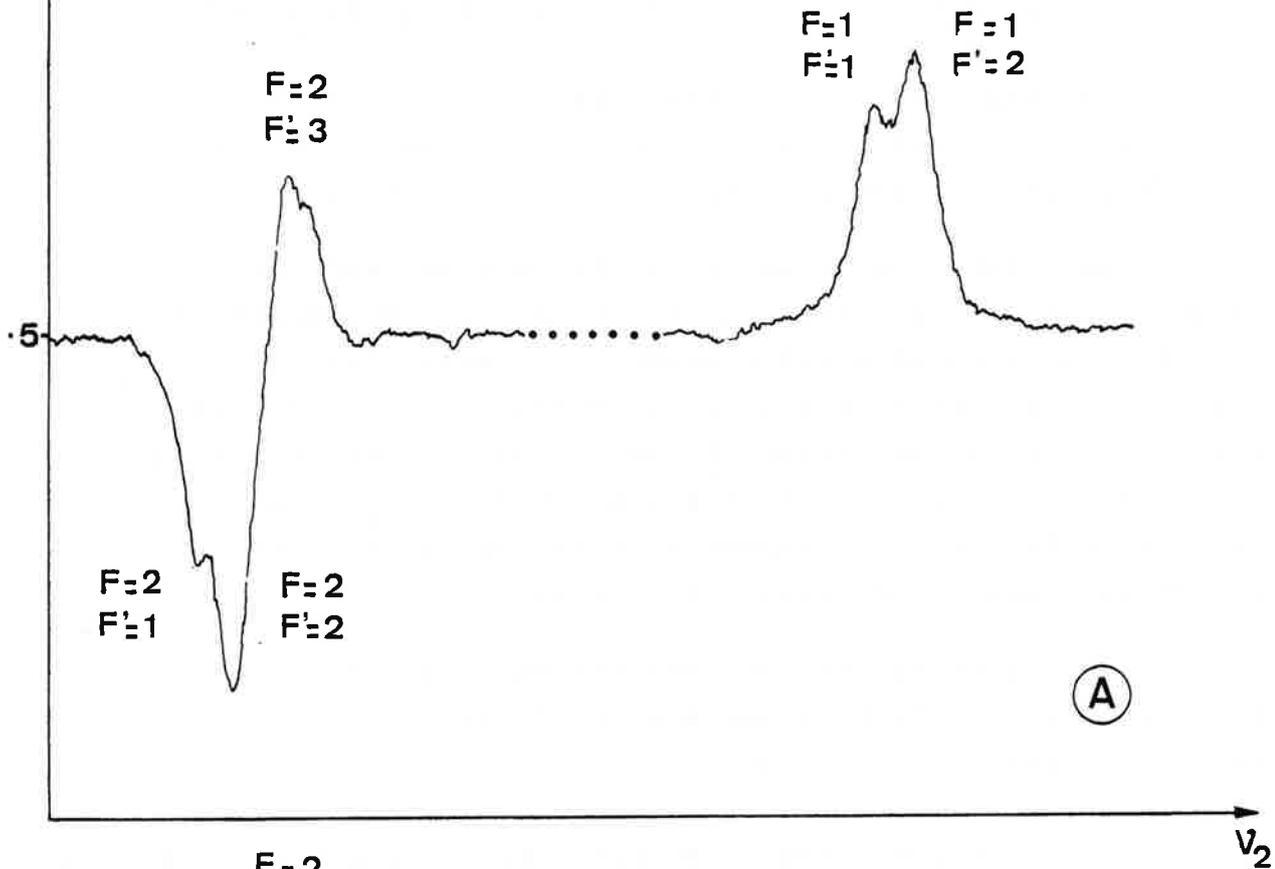


Figure 36 : Spectre de fluorescence de la raie D_2 lorsque deux lasers colinéaires interagissent avec le faisceau d'atomes :

- A Les deux lasers ont des polarisations linéaires de directions orthogonales.
- B Les deux lasers ont des polarisations linéaires de directions parallèles.

C. AMPLITUDE ET LARGEUR EN FREQUENCE DES RESONANCES

Les largeurs de raies observées varient avec la puissance des deux lasers comme on peut s'y attendre, mais elles varient aussi avec les composantes hyperfines étudiées.

Les schémas représentés en figure 37 montrent en effet que, quelle que soit la raie étudiée, les composantes négatives enregistrées correspondent à l'excitation d'un système à trois niveaux négatifs, tandis que les composantes positives correspondent à des systèmes à quatre niveaux. Le cas de la transition $F=2$ ($^2S_{1/2}$) \rightarrow $F'=3$ ($^2P_{3/2}$) est un cas particulier qui correspond à un système à deux niveaux excité par deux lasers quasi-résonnants.

Les comportements des composantes négatives et positives en fonction de la puissance des faisceaux lasers doivent donc être étudiés séparément.

Nous allons maintenant discuter de façon qualitative la manière dont se manifestent les résonances. La fréquence Ω_1 du laser 1 est fixe ; elle est accordée sur la transition $F=2$ ($^2S_{1/2}$) \rightarrow $F'=3$ ($^2P_{3/2}$).

La laser 2, de fréquence Ω_2 , balaye quant à lui les transitions hyperfines des raies D_1 et D_2 . Le signal de fluorescence détecté est proportionnel à la population du sous-niveau hyperfin $F=2$ ($^2S_{1/2}$) et on observe plus particulièrement les variations de cette population produites par la présence du laser 2.

Les atomes du jet sont donc soumis à l'action de deux ondes laser monochromatiques de fréquence Ω_1 et Ω_2 quasi-résonnantes avec les transitions atomiques I et II respectivement. Les fréquences de résonance correspondant à ces transitions sont respectivement ω_1 et ω_2 . Les écarts de fréquence par rapport aux résonances atomiques sont notées respectivement : $\delta_1 = \Omega_1 - \omega_1$ et $\delta_2 = \Omega_2 - \omega_2$. Les vecteurs

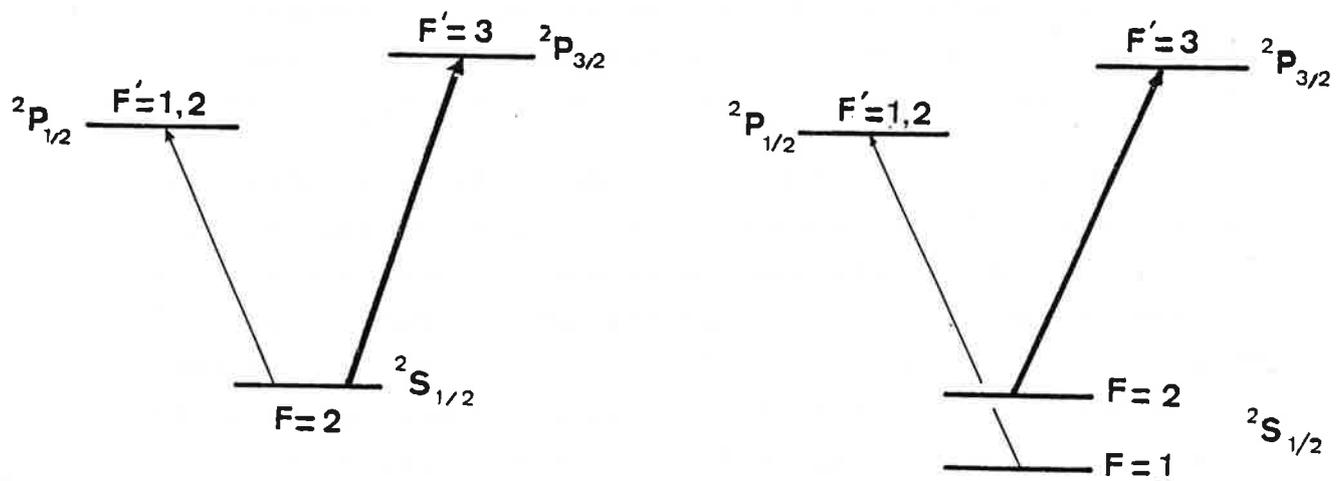
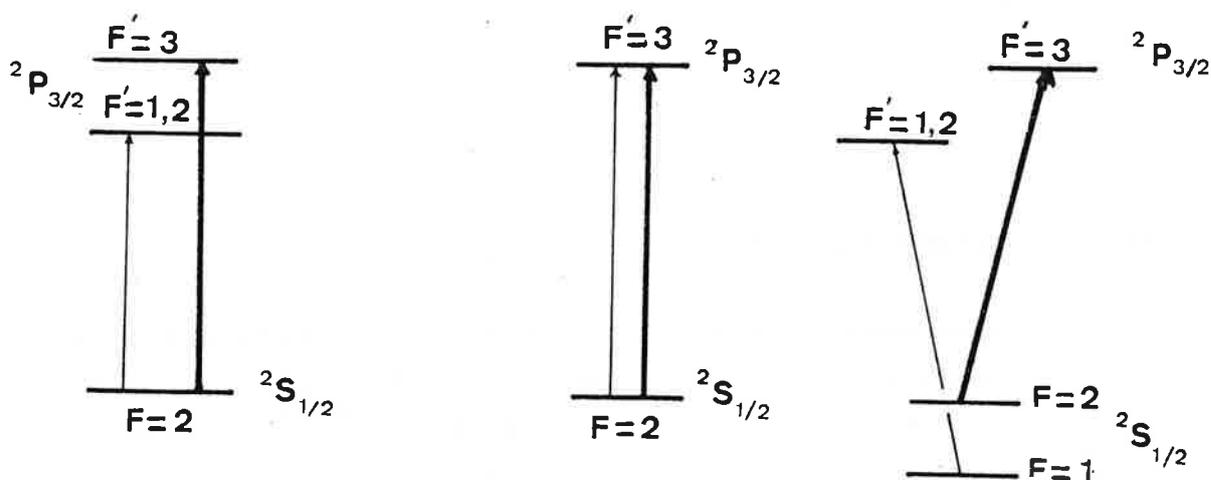
RAIE D₁RAIE D₂

Figure 37

Les systèmes à 3 niveaux correspondent aux raies négatives,
les systèmes à 2 ou 4 niveaux à des raies positives.

d'onde correspondant aux deux ondes lasers seront notés k_1 et k_2 .

Un atome de vitesse longitudinale v voit en fait dans son référentiel propre deux ondes de fréquences $\Omega'_1 = \omega_1 + \delta_1 - k_1 v$ et $\Omega'_2 = \omega_2 + \delta_2 - k_2 v$ à cause de l'effet Döppler. Le champ 1 (respectivement 2) interagira donc de façon résonnante avec les atomes de vitesse v_1 (respectivement v_2) telle que $\Omega'_1 = \omega_1$ (respectivement $\Omega'_2 = \omega_2$) soit $v_1 = \delta_1/k_1$ ($v_2 = \delta_2/k_2$).

Du fait de la largeur homogène Γ (largeur naturelle augmentée des effets de saturation), l'interaction résonnante aura en réalité lieu avec un ensemble d'atomes ayant des vitesses longitudinales v comprises dans un domaine de largeur $\delta v = \Gamma/k$ autour de la valeur δ/k . Si l'on fait varier δ_2 (δ_1 étant fixe), la classe de vitesse concernée va se déplacer dans la distribution des vitesses du jet atomique. Lorsque les deux lasers interagissent avec des atomes appartenant à la même classe de vitesse ($v_1 = v_2$), on observera une résonance ; la condition de résonance correspondante est donc : $\delta_2 = \delta_1 (k_2 \sim k_1)$.

1) Composantes négatives

L'interaction avec le laser 1, fixe, produit une saturation dans le système à deux niveaux $F=2$ ($^2S_{1/2}$) et $F'=3$ ($^2P_{3/2}$) pour une classe de vitesse $v_1 = \frac{\delta_1}{k_1}$. On obtient donc dans la distribution de vitesse de la population du sous-niveau $F=2$ du fondamental un trou centré autour de v_1 dont la largeur δv_1 est déterminée par la largeur homogène Γ_1 de la transition.

Le laser 2 n'interagit de même qu'avec des atomes dont la vitesse est voisine de $v_2 = \frac{\delta_2}{k_2}$ dans une bande de largeur $\nu_2 = \frac{\Gamma_2}{k_2}$ où Γ_2 est la largeur homogène de la transition II.

Dans le cas d'une largeur Döppler du jet atomique très grande devant les largeurs homogènes des deux transitions, le modèle du "hole burning" [39-41] permet de montrer que le signal à la résonance se manifeste sous la forme d'une lorentzienne de largeur à mi-hauteur égale à la somme des largeurs homogènes des deux transitions.

Lorsque la puissance des deux lasers est très faible, les effets de saturation sont négligeables et la largeur de la résonance se réduit à 2γ , où γ est la largeur naturelle des niveaux excités de chacune des transitions.

Lorsque la puissance du laser 1 croît, la largeur des résonances négatives devient égale à $\gamma(1+\sqrt{1+\alpha_1})$ où α_1 est le paramètre de saturation correspondant à la transition $F=2 \rightarrow F'=3$.

Dans nos expériences, l'observation du signal de fluorescence étant effectuée sur un jet atomique et non sur une vapeur, les largeurs naturelles sont inférieures à la largeur Döppler du jet sans que cette dernière puisse être considérée comme très grande par rapport aux premières. Les largeurs de raies expérimentales sont donc légèrement inférieures aux largeurs prévues avec un élargissement Döppler infini.

La figure 38 montre l'évolution de la largeur des raies négatives de la raie D_1 ($F=2 \rightarrow F'=1,2$) en fonction de l'intensité du laser fixe, pour deux valeurs différentes de l'intensité du laser balayable ($P = 2$ mW et $P = 5$ mW). Les largeurs de raies obtenues varient entre 24 MHz et 40 MHz. On peut remarquer que ces largeurs restent inférieures à la largeur Döppler du jet atomique (~ 30 MHz), pour

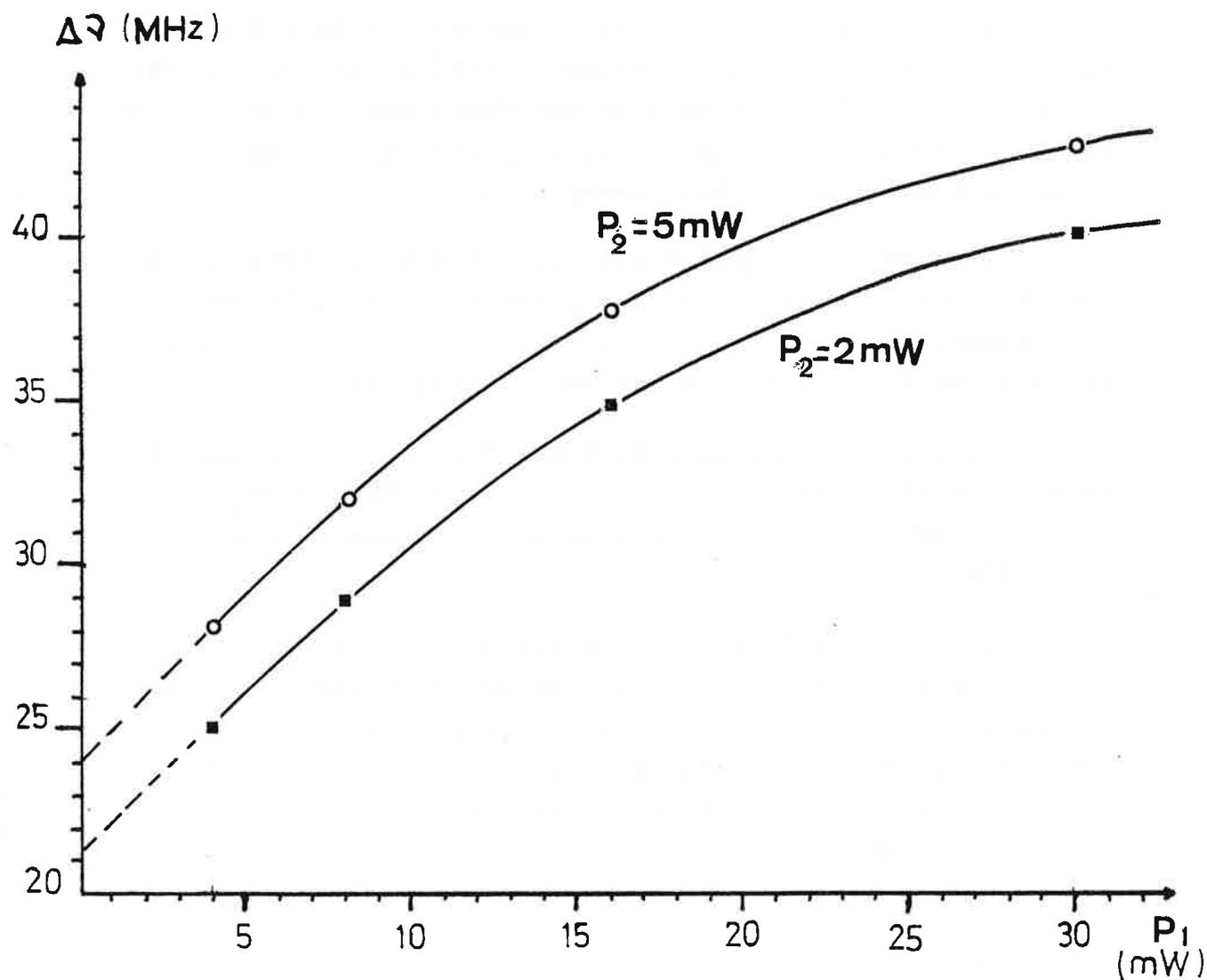


Figure 38

Largeur des composantes négatives $F=2 \rightarrow F'=1,2$ de la raie D_1 en fonction de la puissance du laser fixe pour deux valeurs ($P = 2$ et 5 mW) de la puissance du laser balayable en fréquence.

des puissances du laser saturant inférieures à 10 mW environ. En effet, en-dessous de cette puissance, la largeur homogène de la raie $F=2 \rightarrow F'=3$ est inférieure à la largeur Döppler qui est de l'ordre de 30 MHz (voir chapitre IV).

Lorsque l'intensité du laser fixe devient très grande ($P \sim 30$ mW), on se trouve dans les conditions d'observation de l'effet Stark dynamique (ou effet Autler-Townes optique). Rappelons brièvement que cet effet correspond au dédoublement d'une raie atomique sous l'action d'une onde laser monochromatique très intense connectant un des deux niveaux de la transition avec un troisième niveau atomique. Ce dédoublement se manifeste par l'apparition de deux résonances, respectivement pour [42,43] :

$$\delta_2^+ = \frac{1}{2} \left\{ \delta_1 - (\delta_1^2 - 4W_1^2)^{1/2} \right\}$$

et

$$\delta_2^- = \frac{1}{2} \left\{ \delta_1 + (\delta_1^2 - 4W_1^2)^{1/2} \right\}$$

où $2W$ est la fréquence de nutation de Rabi pour la transition saturée.

La courbe représentant la position des résonances en fonction du désaccord du laser intense est une hyperbole représentée en figure 39. a.

La valeur critique du champ saturant pour laquelle le dédoublement de la raie se manifeste est discutée en détail dans les références [43], [44] ou [45], par exemple, où il est montré qu'elle dépend des probabilités d'émission spontanée des niveaux mis en jeu. Nous n'avons pas effectué d'études systématiques des conditions dans lesquelles l'effet Autler-Townes peut être observé. Nous nous sommes contentés de vérifier que le doublet disparaît lorsque la puissance du laser fixe devient inférieure à 10 mW (figure 39.c). Ceci correspond au fait que l'écart Autler-Townes qui est relié au paramètre de saturation de la transition saturée tombe en dessous de la largeur Döppler du jet. On observe aussi la disparition du doublet lorsque la puissance du laser sonde devient égale à celle du laser saturant [43].

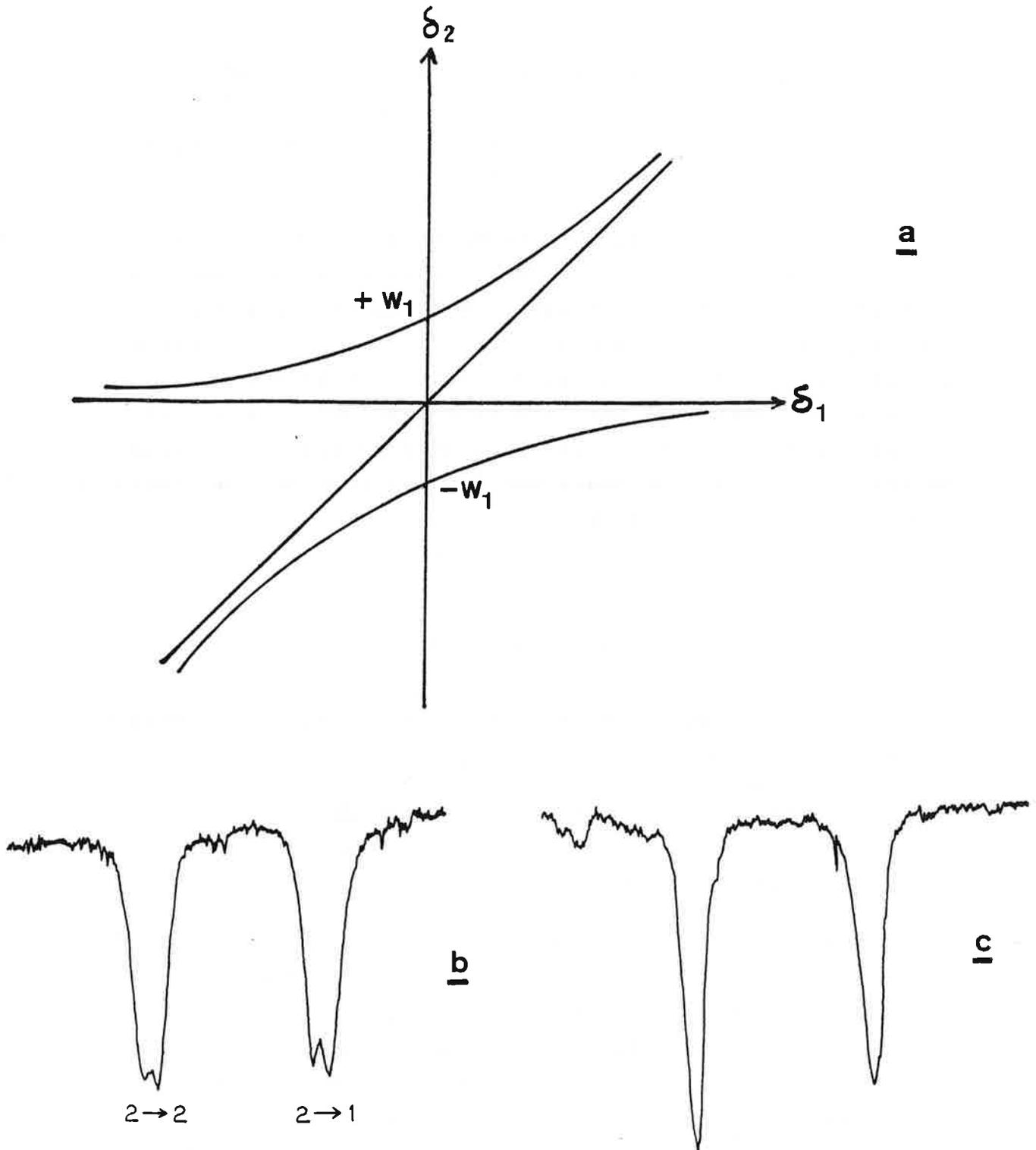


Figure 39

- a. Position des résonances Autler-Townes en fonction du désaccord δ_1 du laser intense.
- b. Dédoubllement des résonances observées sur les composantes $2 \rightarrow 1, 2$.
- c. Disparition du doublet pour une puissance du laser saturant inférieure à 10 mW.

Aucun dédoublement de raies, en revanche, quelle que soit la puissance du laser fixe n'a été observé dans le cas des résonances positives qui constituent des systèmes à quatre niveaux.

Des combinaisons diverses de puissances et de polarisations relatives pour les deux faisceaux ont été étudiées expérimentalement. On a ainsi observé un effet assez remarquable des polarisations respectives des deux lasers sur l'amplitude des raies négatives de la raie D_1 par exemple (figure 40). Lorsque les deux faisceaux lasers sont polarisés rectilignement dans des directions parallèles, les signaux correspondant à ces deux transitions se présentent sous la forme de deux raies d'amplitudes sensiblement égales. On peut en effet montrer dans ce cas particulier, à l'aide d'un calcul simple tenant compte des probabilités de transition entre les différents sous-niveaux Zeeman des niveaux hyperfins mis en jeu, que l'efficacité du pompage hyperfin est peu différente pour l'une ou l'autre transition.

Les courbes tracées sur la figure 41 montrent le comportement en intensité des deux raies $F=2 \rightarrow F'=1,2$, pour une puissance forte du laser fixe ($P = 30$ mW), quand la puissance du laser balayable augmente. Lorsque les deux lasers ont des directions de polarisation parallèles, le rapport du signal négatif sur le fond constant dû au laser saturant varie de la même façon pour les deux transitions.

Lorsque les deux lasers sont polarisés rectilignement dans des directions perpendiculaires, le pompage hyperfin est beaucoup plus efficace dans le cas de la composante $F=2 \rightarrow F'=2$ pour laquelle le rapport signal/fond atteint pratiquement 1 pour des puissances laser intenses.

La composante $F=2 \rightarrow F'=1$ est, quant à elle, plus faible que dans le cas précédent (polarisations parallèles).

Les largeurs de raies se comportent de la même façon en fonction des polarisations des deux lasers, la raie la plus intense étant aussi la plus large (figure 42).

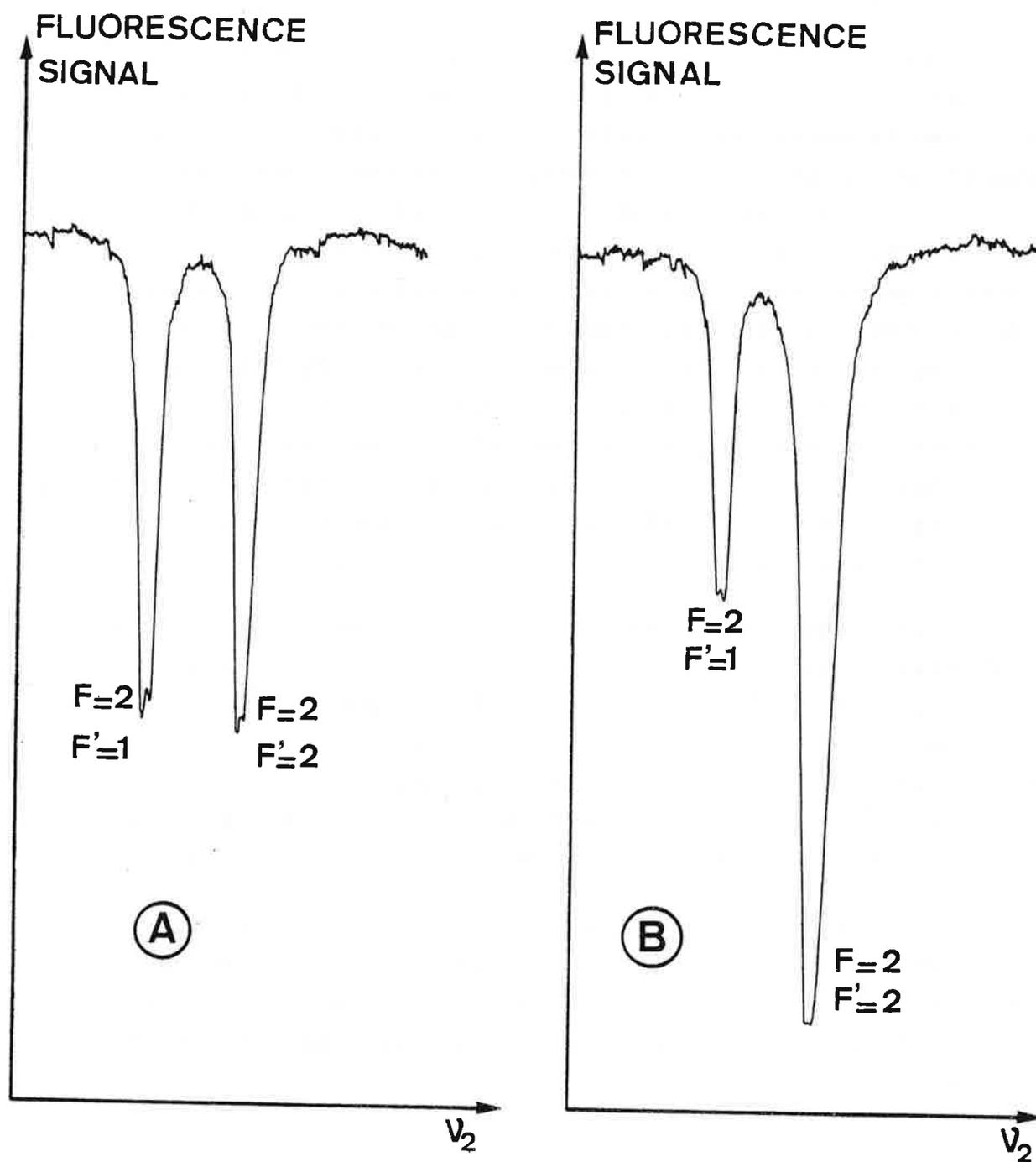


Figure 40

Effet des polarisations respectives des deux faisceaux laser colinéaires (raie D_1) : (A) Polarisation parallèles, (B) Polarisation orthogonales.

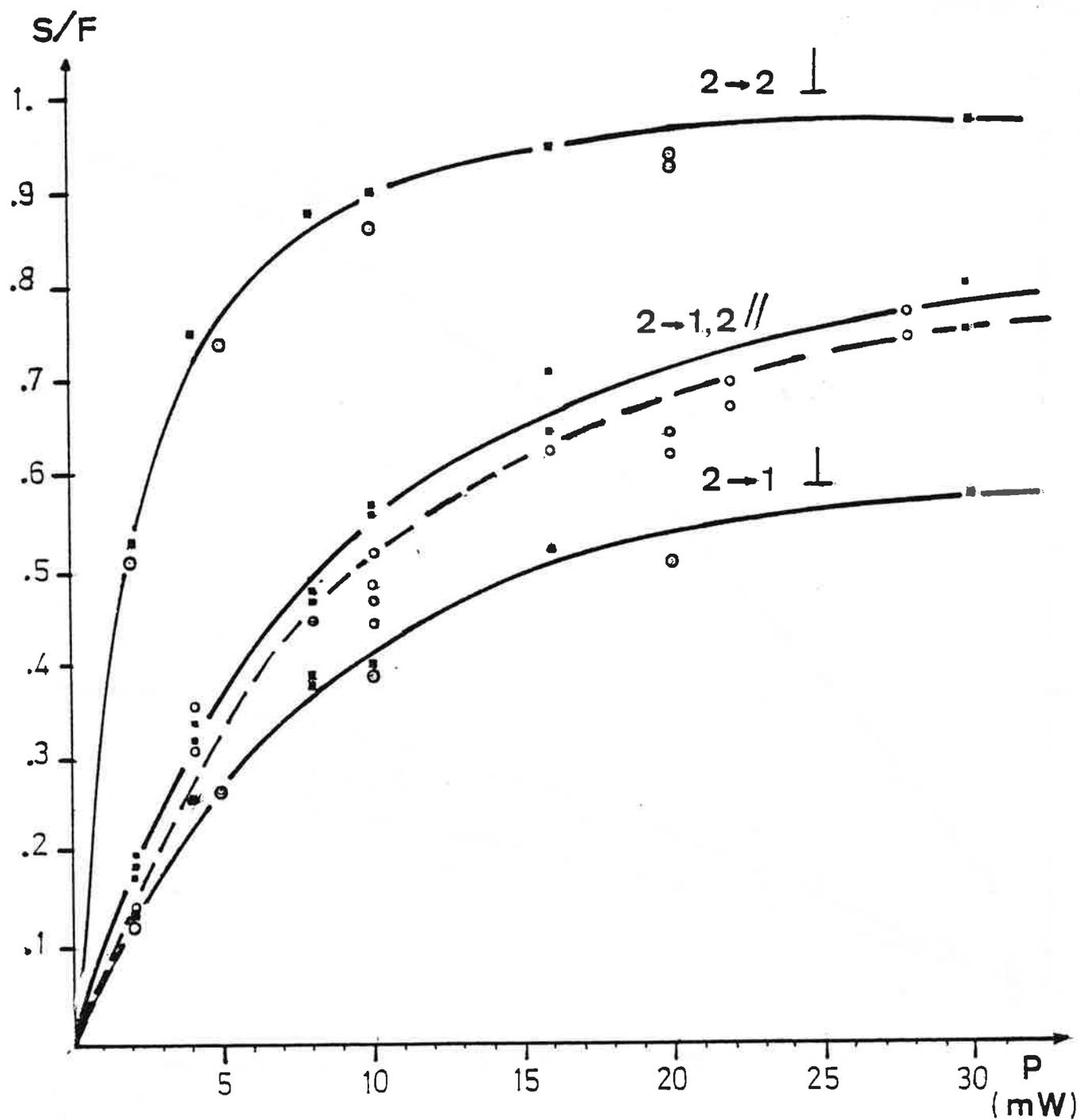


Figure 41

Rapport Signal/Fond des composantes négatives $F=2 \rightarrow F'=1,2$ en fonction de la puissance du laser balayable, les deux lasers étant polarisés parallèlement (\parallel) ou orthogonalement (\perp).

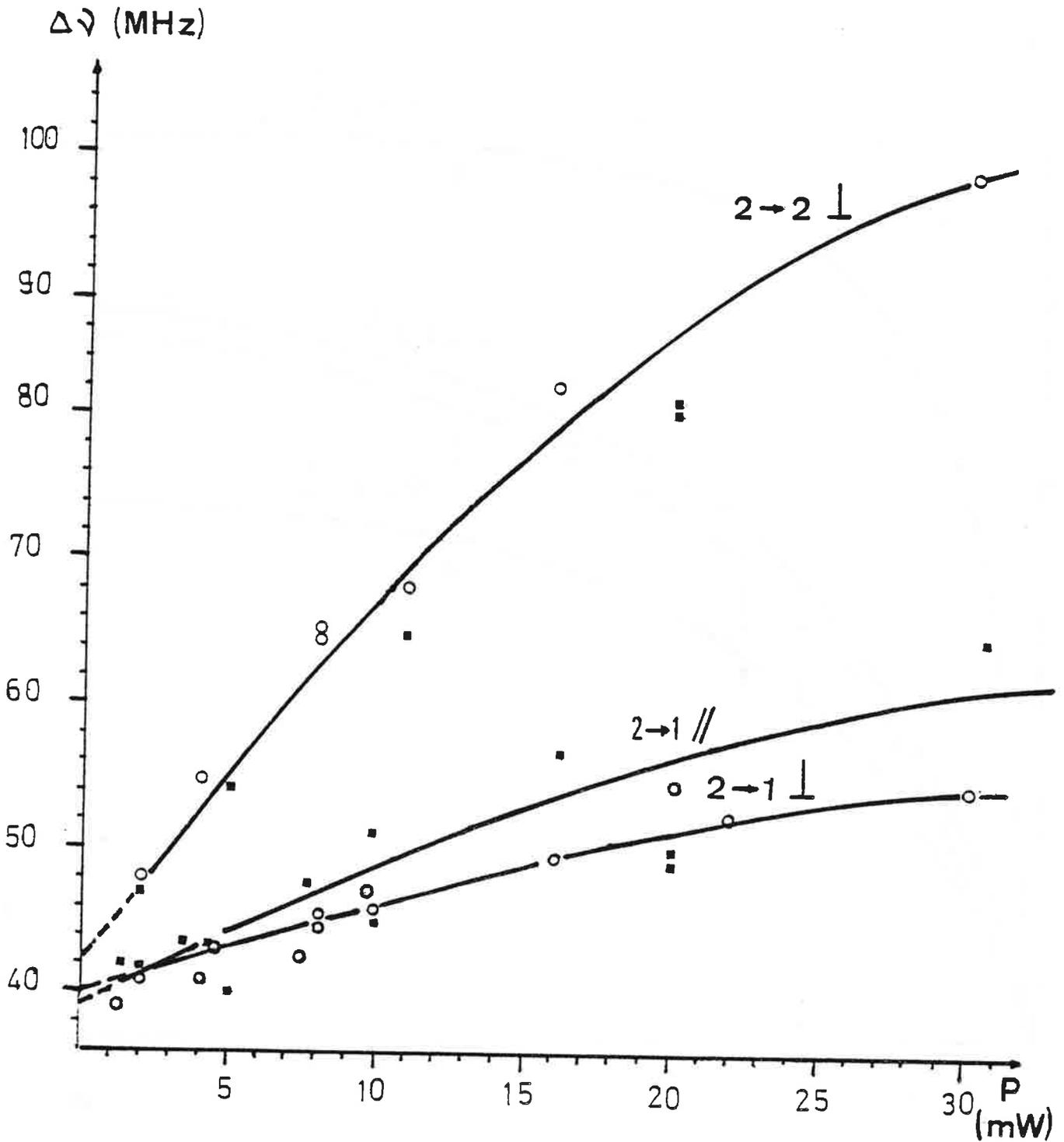


Figure 42

Comportement des largeurs de raies avec la polarisation
respective des deux lasers.

Il est difficile dans le cas de faisceaux polarisés d'évaluer de façon plus quantitative les effets dus à la puissance relative des deux faisceaux lasers, en raison d'abord de la dégénérescence Zeeman des niveaux : il faut considérer le couplage entre sous-niveaux Zeeman par émission spontanée ainsi que l'existence de constantes de relaxation différentes pour les populations, l'orientation et l'alignement, ce qui complique beaucoup le problème de l'étude des systèmes à trois niveaux (voir par exemple [46]). D'autre part, les atomes ne voient pas la même puissance lumineuse tout au long de leur interaction avec les deux faisceaux.

2) Composantes positives

Dans le cas des composantes positives, les systèmes en résonance avec les faisceaux laser sont des systèmes à quatre niveaux, à l'exception de la composante particulière $F=2$ ($^2S_{1/2}$) \rightarrow $F'=3$ ($^2P_{3/2}$) de la raie D_2 .

Dans ce dernier cas, on réalise une expérience d'absorption saturée sur un système fermé à deux niveaux (pas de pompage hyperfin). La méthode à deux lasers n'apporte aucune amélioration quant à la largeur de cette raie qui est comparable à celle qu'on observe quand on l'explore avec un seul laser. Le signal observé résulte en effet de l'addition des signaux de fluorescence induits par chacun des lasers sur des classes de vitesse différentes. On remarque cependant un "trou" dans la largeur de la raie correspondant à l'interaction des lasers 1 et 2 avec la même classe de vitesse dans la largeur Doppler du jet. La largeur de ce

trou serait égale à 2γ si le profil Döppler du jet était infinie puisque, dans notre cas, une seule classe de vitesse est balayée (celle qui est excitée par le laser 2). On observe en fait un trou de largeur légèrement inférieure, voisine de 15 MHz (figure 36).

Pour les autres composantes positives :
 $F=1$ ($^2S_{1/2}$) \rightarrow $F'=1,2$ ($^2P_{1/2}$ ou $^2P_{3/2}$), le signal détecté correspond à l'augmentation de la population du sous-niveau hyperfin $F=2$ consécutif au pompage des atomes hors du sous-niveau $F=1$ durant l'interaction du jet atomique avec le laser balayable.

Considérons l'exemple du groupe des deux composantes $F=1 \rightarrow F'=1,2$ de la raie D_1 . La figure 43 donne les probabilités de transition relatives et les rapports de branchement de l'émission spontanée dans le groupe de composantes hyperfines de la raie D_1 issues du sous-niveaux $F=1$.

A puissance lumineuse égale, la transition $F=1 \rightarrow F'=2$ possède une probabilité de transition 5 fois plus grande que celle de $F=1 \rightarrow F'=1$. Il en résulte, malgré le rapport de branchement plus favorable à cette dernière transition, que la probabilité de désexcitation vers le sous-niveau $F=2$, est trois fois plus grande à partir du sous-niveau $F'=2$ qu'à partir de $F'=1$. Globalement, le pompage hyperfin est donc moins efficace pour la transition $F=1 \rightarrow F'=1$, pour une puissance lumineuse donnée. D'autre part, le sous-niveau hyperfin $F=1$, $m_F=0$, qui n'est pas excité en polarisation π de la lumière, constitue un niveau piège vis à vis du pompage optique hyperfin. Le signal obtenu lorsque le laser balayable est accordé sur cette transition sera donc inférieur à celui qu'on obtiendra dans le cas de la transition $F=1 \rightarrow F'=2$. Pour augmenter l'intensité des signaux, il est préférable pour une puissance laser donnée, que la zone de détection soit placée loin de la région où débute l'interaction atome-lumière afin que le pompage hyperfin ait transféré le maximum d'atomes dans le niveau $F=2$. Dans

le cas de la transition $F=1 \rightarrow F'=2$, le nombre maximum d'atomes transférés est de l'ordre de $\frac{3N_0}{8}$ (si N_0 est la population totale du fondamental avant toute excitation) ; pour la transition $F=1 \rightarrow F'=1$, à cause du pompage Zeeman, le nombre d'atomes transférés restera inférieur à $2\frac{N_0}{8} = \frac{N_0}{4}$. Le rapport des intensités des deux composantes, même à forte puissance, sera donc inférieur à $\frac{2}{3}$ (figure 35).

Pour un jet de forte largeur Döppler, la largeur des raies est donnée par la convolution de la largeur homogène de la transition $F=2 \rightarrow F'=3$, éventuellement élargie par puissance, avec la largeur homogène de la transition étudiée, éventuellement élargie par effet de pompage hyperfin. La largeur totale résultante sera donc égale à $\gamma(\sqrt{1+\alpha_1} + C_{p.h.})$ où γ est la largeur naturelle des niveaux excités et $C_{p.h.}$ caractérise l'élargissement par pompage hyperfin. A faible puissance des deux lasers, on tendrait donc vers une largeur limite égale à 2γ .

Dans le cas d'un jet de largeur Döppler nulle, le trou creusé par le laser fixe a une largeur nulle et la largeur de raie résultant du balayage du laser 2 est simplement égale à $\gamma \times C_{p.h.}$.

Expérimentalement, nous nous trouvons dans une situation intermédiaire. Les largeurs de raies observées sont donc comprises entre les valeurs prévues pour les deux cas : largeur Döppler infinie et nulle.

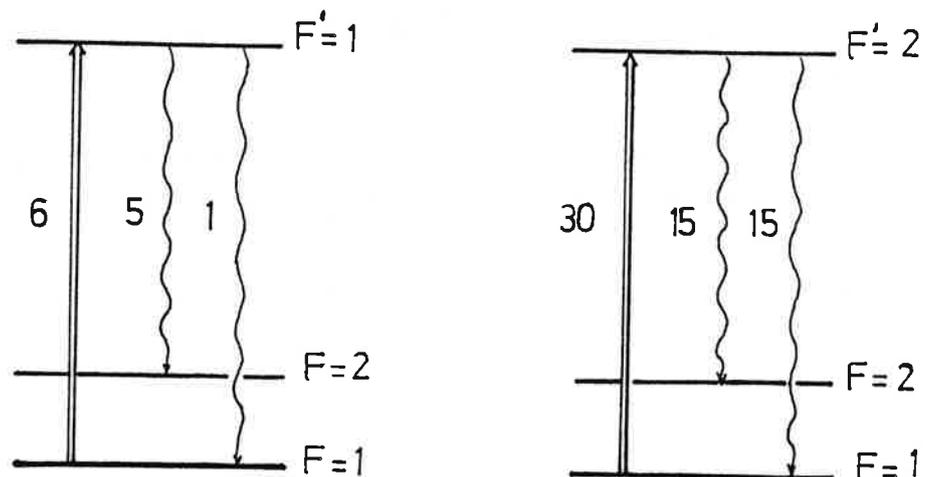


Figure 43

Probabilités de transition relatives et rapports de branchement de l'émission spontanée dans le groupe des composantes hyperfines de la raie D_1 issues de $F=1$.

3) Conclusion

Dans les expériences à deux lasers, les signaux se présentent, suivant les transitions, sous forme de résonances positives ou négatives sur un fond constant.

Pour des puissances faibles des deux lasers, la largeur de raie de ces signaux est principalement déterminée par les largeurs naturelles des transitions étudiées, à condition toutefois que la largeur Döppler du jet atomique soit importante, comparée à ces largeurs naturelles. Cette méthode fournit donc un moyen de s'affranchir de la largeur Döppler résiduelle du jet atomique, dans le cas où l'expérience a lieu sur un jet de vitesse moins bien définie que le nôtre par exemple.

Lorsque la puissance du laser fixe devient très importante, par rapport à celle du deuxième laser, le comportement des raies positives et négatives devient différent : la largeur de raie pour les premières est principalement déterminée par la largeur Döppler tandis que les effets de puissance dus au laser intense peuvent élargir les raies négatives au-delà de la largeur Döppler.

Les polarisations relatives des deux lasers modifient enfin les intensités relatives des composantes négatives ; cet effet peut être utilisé dans certains cas particuliers pour augmenter l'amplitude d'une composante peu intense autrement.

Le gain en résolution et sensibilité dans la détection de la fluorescence du jet apporté par l'utilisation de deux lasers au lieu d'un seul fait l'objet du paragraphe suivant.

D. GAIN EN RESOLUTION DES SIGNAUX

Le gain en résolution apporté par les expériences à deux lasers qui viennent d'être décrites est bien illustré par les transitions de la raie D_2 ($^2S_{1/2} \rightarrow ^2P_{3/2}$). En effet, le niveau supérieur possède une structure hyperfine très serrée, les écarts en fréquence entre les composantes hyperfines étant 59, 34 et 19 MHz. Lorsque le jet atomique est éclairé par les deux lasers, de puissances égales et modérées (~ 3 mW), les résonances négatives correspondant aux transitions hyperfines $F=2 \rightarrow F'=1,2$ sont bien résolues (figure 44.a). La profondeur de modulation (rapport signal sur fond) pour ces composantes est de l'ordre de 3/5. Si l'on obture l'un des faisceaux et qu'on explore la même structure hyperfine sans modifier l'intensité du laser d'excitation, on voit qu'en raison du pompage optique hyperfin les composantes précédentes ne sont pas résolues et sont en partie masquées par le pied de la composante hyperfine $F=2 \rightarrow F'=3$, qui, elle, ne subit pas de pompage optique.

Pour obtenir la même résolution que dans l'enregistrement effectué à l'aide des deux lasers, il est nécessaire d'atténuer l'intensité du faisceau excitateur d'un facteur très important. Le signal de fluorescence est, par conséquent, fortement réduit aussi. La figure 44.b présente un enregistrement effectué avec une intensité du faisceau laser de 100 μ W, présentant la même résolution que l'enregistrement de la figure 44.a. Une comparaison des échelles verticales montre un gain en intensité pour les différentes composantes supérieur à 30, au bénéfice de l'enregistrement réalisé avec deux lasers excitateurs. Il faut signaler cependant que le gain du signal observé a été obtenu avec une intensité de faisceau 30 fois plus grande, et, par conséquent, un bruit résultant de la lumière laser diffusée $\sqrt{30}$ fois plus important ; l'amélioration du rapport signal sur bruit réalisée dans les expériences à deux lasers est donc égale à $\sqrt{30}$ malgré tout, dans l'hypothèse la moins favorable. Il faut néanmoins signaler que cette comparaison des deux

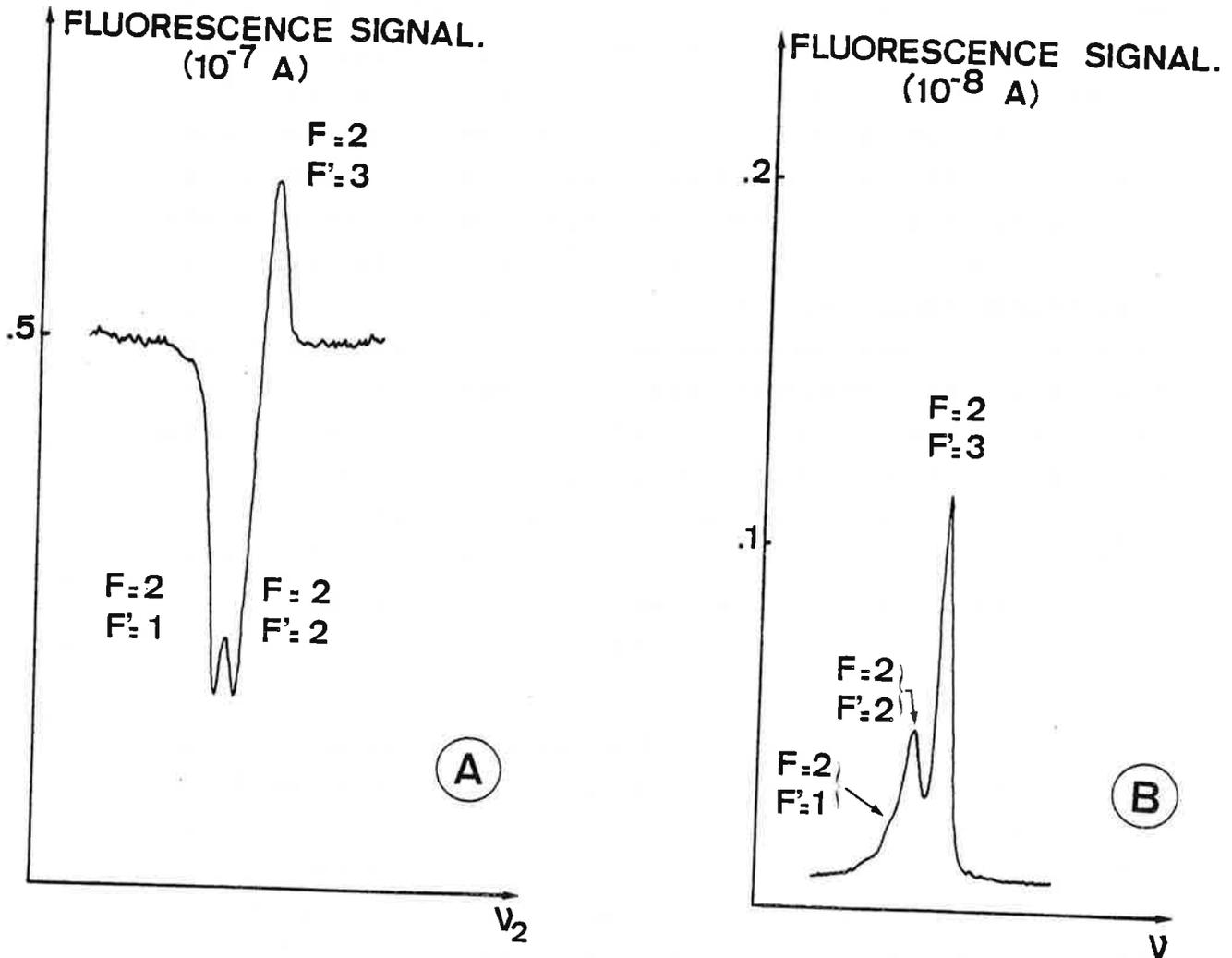


Figure 44

Comparaison des intensités des signaux de fluorescence, à résolution égale, pour les "composantes rouges" de la raie D_2 :

- (A) Les deux faisceaux laser colinéaires interagissent (puissance laser : 3mW)
- (B) Un seul faisceau laser interagit (puissance : 100 μ W) .

méthodes a été faite dans des conditions défavorables à l'expérience à deux lasers, du point de vue de la lumière diffusée. En effet, pour se placer dans les meilleures conditions de détection de la fluorescence dans l'expérience à un seul laser, la zone de détection a été placée aussi près que possible de la sortie de la chambre de neutralisation, afin de diminuer les effets du pompage hyperfin dans cette expérience (35 cm environ). Le détecteur, dans cette position, était donc sensible à la lumière diffusée dans cette chambre. Or, contrairement à la méthode utilisant un seul laser, on a tout intérêt à éloigner la zone de détection de la zone de neutralisation dans une expérience à deux lasers, puisque cela permet d'augmenter l'efficacité du pompage hyperfin qui est à l'origine du signal. On peut ainsi diminuer efficacement le bruit au niveau du détecteur tout en augmentant le signal.

E. UNE EXPERIENCE A DEUX LASERS REALISEE AU CERN

Ce paragraphe présente les résultats d'une expérience à deux lasers réalisée non plus dans les conditions "idéales" d'un jet atomique de laboratoire, mais sur un jet de Sodium ^{23}Na délivré par un séparateur d'isotopes en ligne avec un accélérateur. L'expérience a eu lieu au séparateur de masse ISOLDE du CERN à Genève. Les isotopes sont produits dans des réactions nucléaires à l'intérieur d'une cible d'Uranium bombardée par le faisceau de protons pulsé de 600 MeV du synchrocyclotron du CERN. Les produits de réaction diffusant à l'extérieur de la cible sont ionisés sur une surface de Tungstène portée à très haute température. Les ions sont ensuite accélérés par une différence de potentiel de 60 kV avant d'être séparés en masse et transmis à l'appareil destiné à l'expérience proprement dit. L'expérience a été réalisée en collaboration avec un groupe de chercheurs de l'Université de Mayence (RFA), installé au CERN. L'appareil de spectroscopie sur jets colinéaires mis

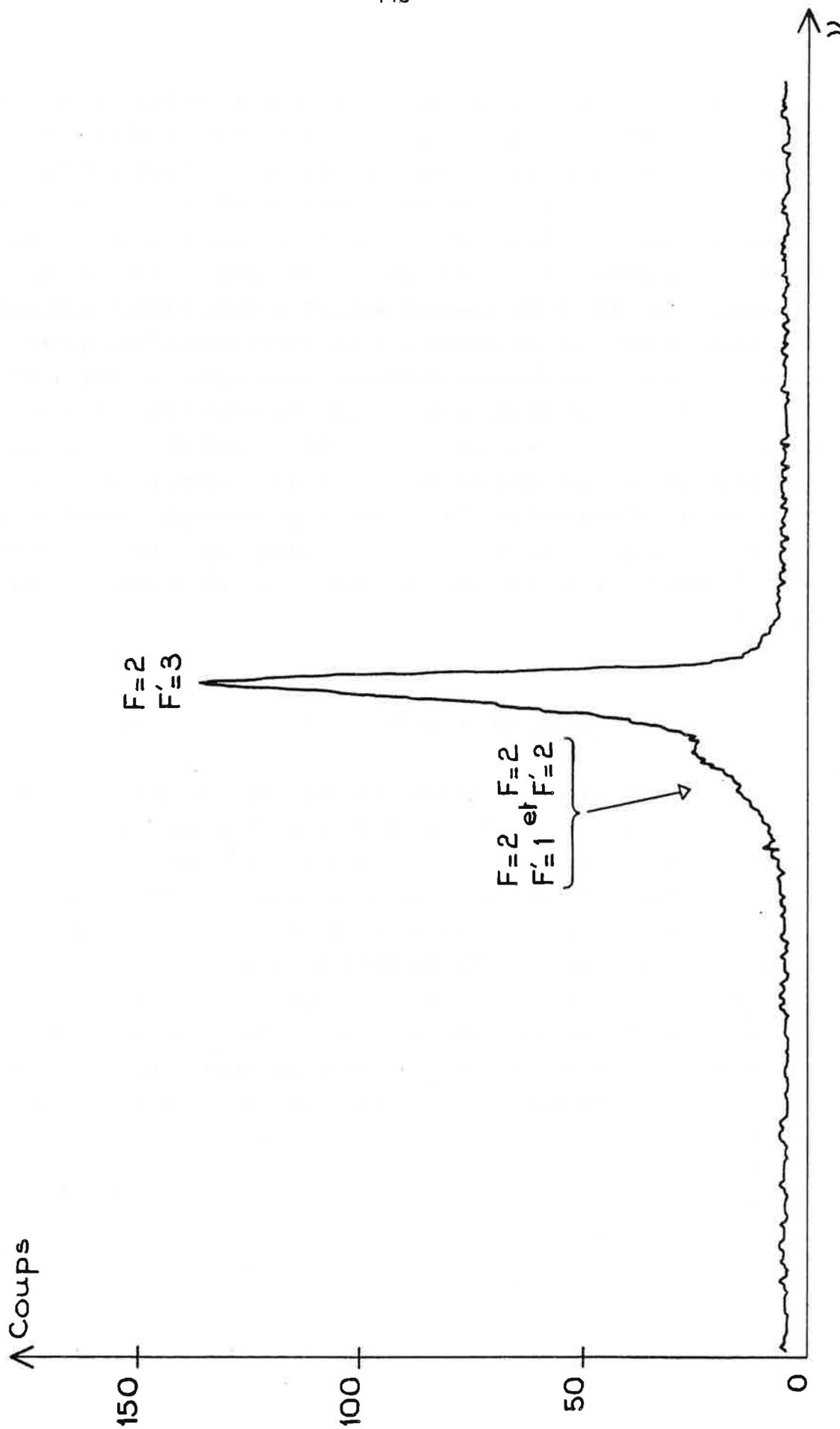


Figure 45 : Composantes rouges de la raie D_2 quand le jet atomique est excité par un seul laser colinéaire.

au point par ce groupe est, dans ses grandes lignes, semblable au nôtre [6]. Il faut noter cependant que l'accord Doppler entre la lumière laser et les atomes est effectué pour l'un des faisceaux à l'aide d'une post-accélération appliquée au jet d'ions et pour l'autre faisceau grâce au sigmamètre. La zone de détection a une longueur de 20 cm ; la lumière de fluorescence est recueillie par deux lentilles cylindriques et transportée par fibre optique jusqu'au photomultiplicateur. L'électronique d'acquisition est adaptée aux conditions particulières d'excitation d'un jet atomique peu intense.

Les enregistrements présentés figures 45 et 46 illustrent le gain en sensibilité apporté par la technique d'excitation à deux lasers lorsque le jet atomique est de faible intensité. Pour les enregistrements présentés, le nombre d'atomes est d'environ $5 \cdot 10^8$ atomes par seconde et une technique de comptage de photons a été utilisée. Le premier spectre présenté a été réalisé avec des puissances respectives de 2,5 mW et 5 mW pour le laser balayable et le laser fixe. Les raies résolues correspondent aux transitions $F=2 \leftrightarrow F'=1,2$ de la raie D_2 distantes de 34 MHz. Pour obtenir la même résolution, lorsqu'on détecte la fluorescence du jet excité par un seul laser, il est nécessaire d'atténuer l'intensité lumineuse à 250 μ W environ.

Le bruit qu'on observe sur l'enregistrement réalisé avec les deux lasers est dû, en partie, à l'augmentation de la lumière parasite consécutive à l'augmentation de la puissance lumineuse, mais il provient aussi de fluctuations importantes dans l'électronique de comptage des photons. Si on suppose que ce bruit suit une loi statistique, on peut vérifier que le rapport signal sur bruit pour la composante $F=2 \rightarrow F'=3$ est sensiblement le même dans les deux expériences. En revanche, pour la composante $F=2 \rightarrow F'=2$, il est de l'ordre de 7 dans l'enregistrement réalisé à l'aide d'un seul laser et voisin de 50 dans l'enregistrement réalisé avec

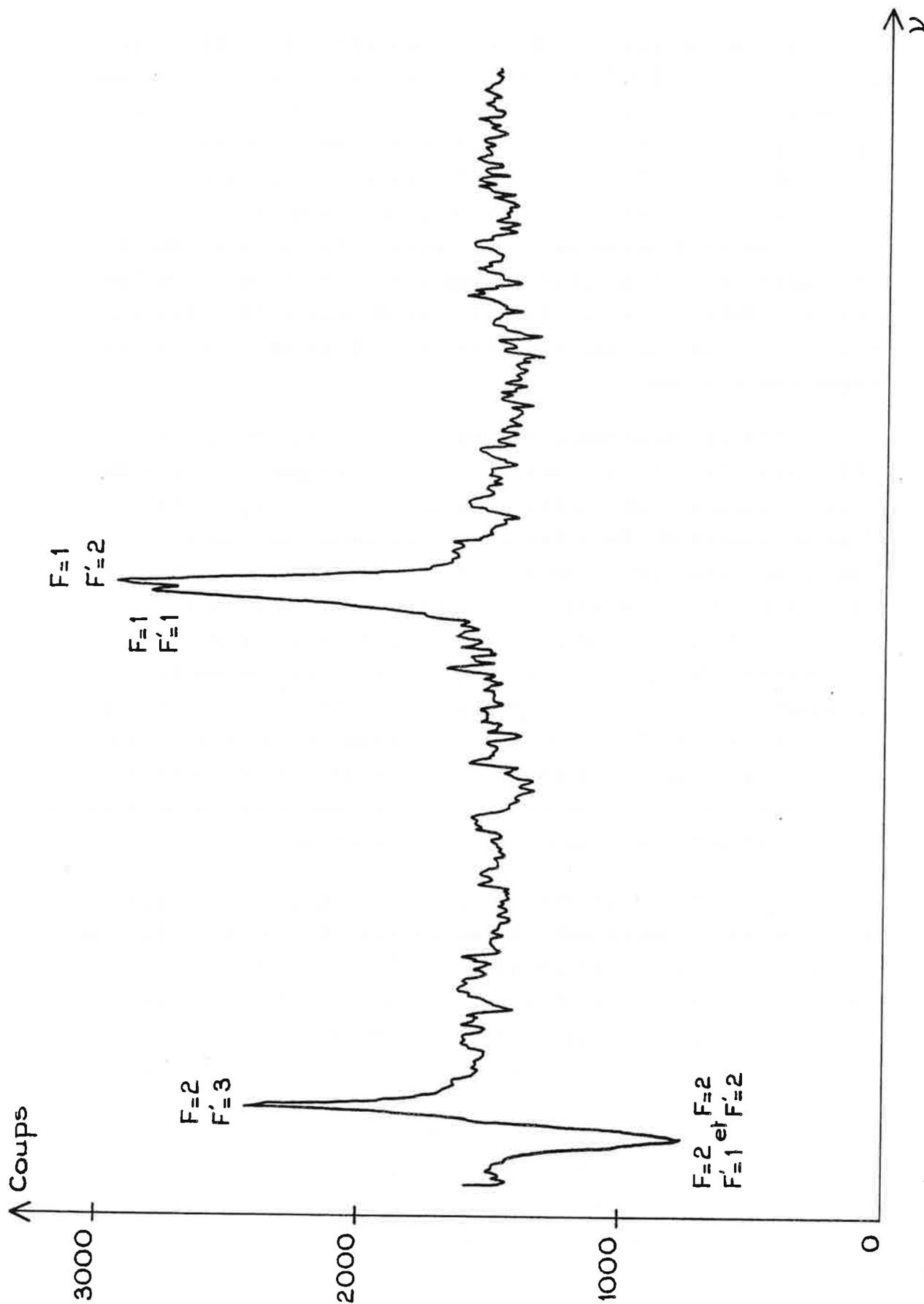


Figure 46 : Composantes rouges de la raie D_2 , le jet atomique interagissant avec deux lasers colinéaires.

deux lasers. Pour cette dernière transition, on réalise donc un gain substantiel, de l'ordre de 7.

F. CONCLUSION

Les expériences à deux lasers qui viennent d'être décrites apportent un gain en sensibilité net dans le cas des transitions hyperfines soumises à un pompage optique important. Cette technique peut donc se montrer intéressante lorsque les expériences sont menées sur des jets atomiques peu intenses.

On a vu aussi que cette méthode apporte une amélioration du point de vue de la résolution puisque la limite inférieure des largeurs de raies observées est de l'ordre de 2γ , où γ est la largeur naturelle. Ce gain en résolution peut aussi se révéler intéressant dans le cas d'un jet atomique de largeur Döppler important.

En outre, dans ce schéma, la zone de détection peut être placée loin en aval de la chambre d'échange de charges où sont créés les atomes. L'intensité lumineuse requise pour pomper le faisceau atomique peut donc être réduite de façon conséquente. De plus, dans l'espace libre dégagé entre les deux zones, il devient possible de réaliser des expériences de résonance magnétique pour des mesures de spin ou de moment magnétique nucléaires. Ces expériences feront l'objet du chapitre VI.

Chapitre VI

APPLICATION A LA MESURE DE SPINS NUCLEAIRES EN SPECTROSCOPIE COLINEAIREA. INTRODUCTION

Dans l'introduction générale à cette première partie du mémoire, consacrée à la technique de spectroscopie colinéaire, nous avons indiqué que l'étude des résonances optiques de l'atome donne accès à des informations sur la structure du noyau. L'extraction des paramètres nucléaires se fait à partir de la mesure de la structure hyperfine du niveau fondamental et des premiers niveaux excités de l'atome ainsi que du déplacement isotopique entre deux isotopes du même élément, la spectroscopie colinéaire s'est révélée un outil efficace dans ce domaine [47], [4].

L'énergie d'un niveau hyperfin caractérisé par le moment angulaire total $F = I + J$ (I : spin nucléaire, J : moment angulaire électronique) est donnée par la formule bien connue :

$$W_F = A \frac{C}{2} + B \frac{\frac{3}{4}C(C+1) - I(I+1)J(J+1)}{2I(2I-1)J(2J-1)}$$

où $C = F(F+1) - J(J+1) - I(I+1)$, A et B étant les constantes d'interaction dipolaire magnétique et quadrupolaire électrique. Il n'est possible de déterminer de façon unique les trois paramètres de structure hyperfine I, A et B à partir de la même transition que si l'on peut observer trois écarts hyperfins au moins. Dans le cas contraire, le spin doit être déterminé par une procédure annexe : le plus souvent, celle-ci consiste simplement à compter le nombre de composantes hyperfines observées (dans les cas où $I < J$) ou à mesurer leurs intensités relatives, le rapport des intensités dépendant du spin I à travers les coefficients de Clebsch-Gordan intervenant dans les probabilités de transition.

Dans certaines situations, ces différentes procédures ne permettent pas de déterminer le spin I sans ambiguïté : une structure hyperfine mal résolue ou une coïncidence entre deux résonances peuvent mener à une évaluation erronée du nombre de composantes hyperfines présentes dans la structure ; d'autre part, même dans les cas où la valeur du spin n'est pas trop grande, la validité de la mesure des intensités relatives des raies peut être rendue incertaine par les effets de pompage optique sur le profil des raies [6] [15]. Il est alors nécessaire, lorsque cela est possible, d'entreprendre l'étude d'une deuxième transition optique dans le spectre de l'atome neutre ou de l'ion du même élément [48], [49]. La mesure directe du spin du noyau peut, par conséquent se révéler nécessaire dans certains cas.

Ce chapitre est précisément destiné à la présentation de l'adaptation de la technique de spectroscopie colinéaire à la méthode classique de résonance magnétique.

Les tests préliminaires ont, ici encore, été réalisés sur le jet rapide de ^{23}Na stable décrit précédemment, avant l'extension des expériences en direction d'isotopes radioactifs produits "en ligne".

L'influence d'un champ magnétique statique sur le signal de fluorescence émis par le jet atomique excité colinéairement, a été également étudiée.

Nous en avons déduit une méthode originale de détermination des spins et des moments nucléaires ; cette méthode repose sur la mesure de la fréquence de Larmor. En effet, la précession de Larmor des moments magnétiques atomiques dans le champ statique H_0 se traduit par une modulation du signal de fluorescence au cours d'un balayage de l'amplitude de ce champ magnétique statique.

Ces deux méthodes de mesure - en présence d'un champ statique seul, puis à l'aide d'un champ radiofréquence - seront présentées successivement après quelques rappels fondamentaux sur la structure des niveaux atomiques en présence d'un champ magnétique, et après la présentation du dispositif expérimental mis au point pour ces expériences.

B. NIVEAUX D'ENERGIE DE L'ETAT FONDAMENTAL DANS UN
CHAMP MAGNETIQUE

Les atomes du jet sont soumis dans les expériences que nous allons décrire à des champs magnétiques dont l'intensité varie d'une fraction de gauss à quelques dizaines de gauss. Nous rappelons ici brièvement quelques résultats classiques [8].

L'hamiltonien de l'atome placé dans un champ magnétique extérieur \vec{H}_0 peut être écrit sous la forme suivante pour tous les sous-niveaux de l'état fondamental de même valeur de J ($J = \frac{1}{2}$ pour Na) :

$$\mathcal{H} = hA\vec{I} \cdot \vec{J} - \frac{\mu_0}{J} \vec{J} \cdot \vec{H}_0 - \frac{\mu_I}{I} \vec{I} \cdot \vec{H}_0 + \text{constante}$$

$$\mathcal{H} = \mathcal{H}_0 + \mathcal{H}_1 + \mathcal{H}_2.$$

On dit que l'on est en champ faible lorsque le premier terme est prépondérant devant les deux autres termes. 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 . Il y aura donc, respectivement, $2I+2$ et $2I$ sous-niveaux Zeeman dans chacun des niveaux hyperfins $F = I + \frac{1}{2}$ et $F = I - \frac{1}{2}$.

On se trouve en champ magnétique fort lorsque, au contraire, \mathcal{H}_0 est négligeable devant \mathcal{H}_1 . Dans ce cas, il faut utiliser la base des états propres $|m_I, m_J\rangle$ dans laquelle l'opérateur $\mathcal{H}_1 + \mathcal{H}_2$ est diagonal, la perturbation étant à présent \mathcal{H}_0 .

Dans le cas du Sodium ($J=\frac{1}{2}$), les niveaux d'énergie se groupent en deux paquets correspondant aux deux valeurs possibles de m_J : $m_J = \pm\frac{1}{2}$. Ceci vient du fait que le moment magnétique nucléaire μ_I est, en valeur absolue, très inférieur au moment électronique μ_J et donc que \mathcal{H}_2 est toujours négligeable devant \mathcal{H}_1 . Dans le cas général (valeurs quelconques de J et H_0), les valeurs propres de \mathcal{H} doivent être déterminées par une diagonalisation numérique du hamiltonien.

Cependant, dans le cas de $J=\frac{1}{2}$, des simplifications interviennent qui permettent de donner une expression analytique des énergies des niveaux qui peuvent être calculées exactement comme des fonctions du champ magnétique H_0 . Ces énergies sont données par la formule de Breit-Rabi :

$$W_{F, m_F}(H_0) = -\frac{\Delta W}{2(2I+1)} - \frac{\mu_I}{I} H_0 m_F \frac{\Delta W}{2} \left(1 + \frac{4m_F^2 x}{2I+1} + x^2 \right)^{1/2}$$

où $\Delta W = \frac{hA}{2}(2I+1) = h\Delta\nu_{\text{HFS}}$ est l'écart d'énergie correspondant à la structure hyperfine du fondamental ($\Delta\nu_{\text{HFS}} = 1772$ MHz pour ^{23}Na) ;

et $x = \frac{(-\mu_J/J + \mu_I/I)}{\Delta W} H_0$.

Le signe + correspond au niveau $F = I + \frac{1}{2}$, le signe - à $F = I - \frac{1}{2}$

- lorsque $x \ll 1$, l'approximation du champ faible est valable ;
- lorsque $x \gg 1$, c'est l'approximation du champ fort qui s'applique ;
- entre ces deux domaines, le champ est dit intermédiaire.

Les niveaux d'énergie $W_{F, m_F}(H)$ sont représentés sur la figure 47 dans le cas du ^{23}Na ($I=\frac{3}{2}$, $J=\frac{1}{2}$, $\mu_I > 0$).

L'ordre de grandeur de x peut être estimé en fonction de H pour ^{23}Na :

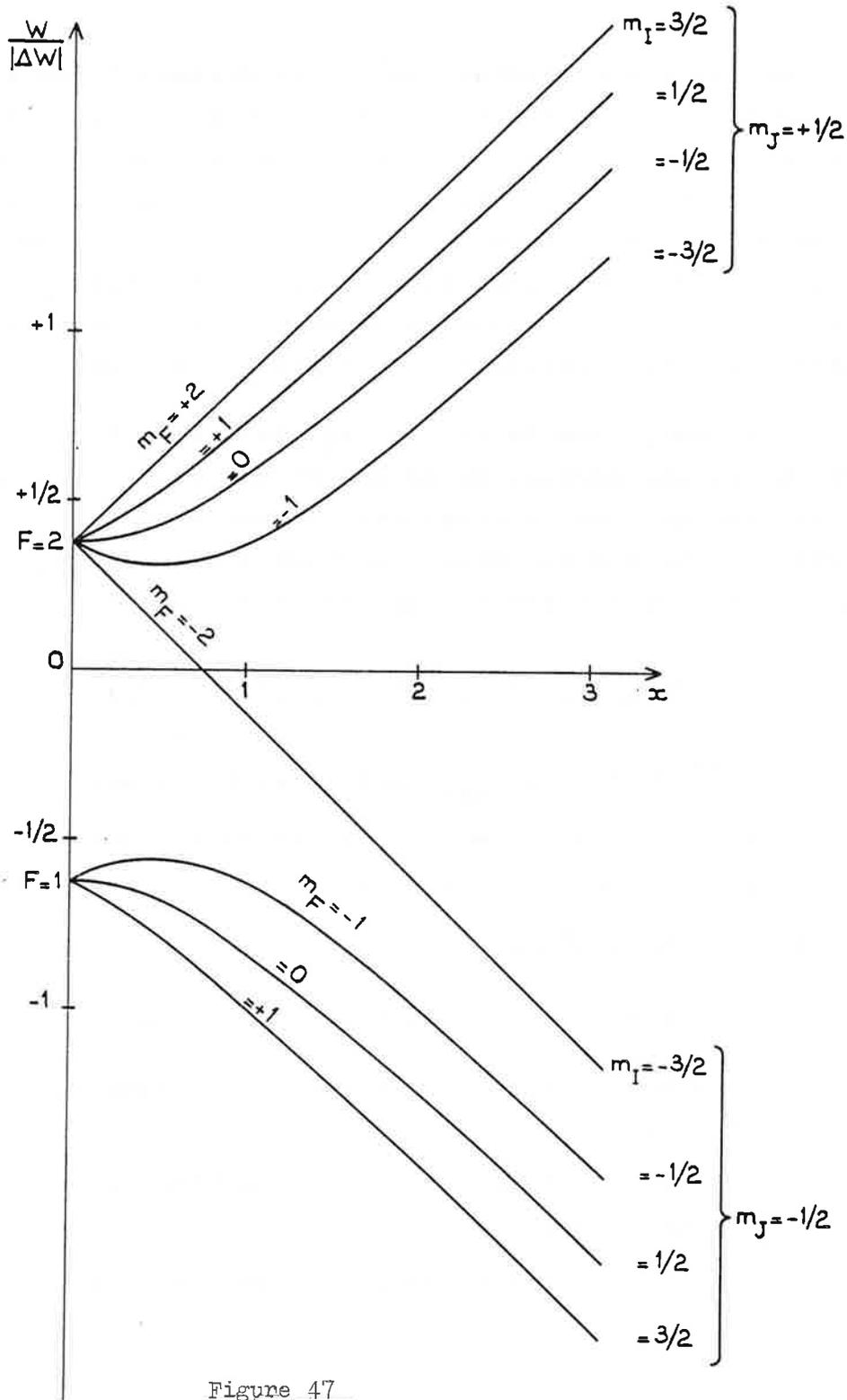


Figure 47

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 $\mu_I > 0$ (cas de ^{23}Na).

$$x = \frac{-\mu_J/J + \mu_I/I}{\Delta W} H_0 = \frac{(g_J - g_I) \mu_0}{\Delta W} H_0 \approx \frac{g_J \mu_0}{h \Delta \nu_{HFS}} H_0$$

$$\left(g_I = -\frac{\mu_I}{\mu_0 I} \ll g_J \right)$$

$\mu_0/h = 1,40$ MHz/gauss, ce qui entraîne :

$$x = 1 \text{ pour } H_0 \approx 630 \text{ gauss.}$$

C. DESCRIPTION DU DISPOSITIF EXPERIMENTAL

Le dispositif expérimental qui a été utilisé pour ces expériences est le même que celui qui a été décrit précédemment à l'exception de la région où sont produits les champs magnétiques.

A la fin du chapitre V, nous avons signalé l'intérêt d'éloigner la zone de détection de la cellule d'échange de charge afin d'accentuer les effets du pompage optique qui sont détectés dans les mesures effectuées à l'aide de deux lasers colinéaires au jet atomique rapide. Un autre avantage, matériel celui-là, est de dégager une longueur de jet atomique libre où il est possible de réaliser l'interaction des atomes avec les champs magnétiques, les effets de cette interaction sur le signal de fluorescence étant ensuite détectés en aval.

La région dégagée entre la chambre d'échange de charges et la chambre de détection a une longueur de 25 cm environ (figure 48).

Le champ magnétique statique est produit par deux bobines de Helmholtz, orientables, de 23 cm de diamètre, disposées symétriquement de part et d'autre de l'axe du jet. La direction du champ magnétique peut être tournée de n'importe quel angle dans un plan perpendiculaire au faisceau laser.

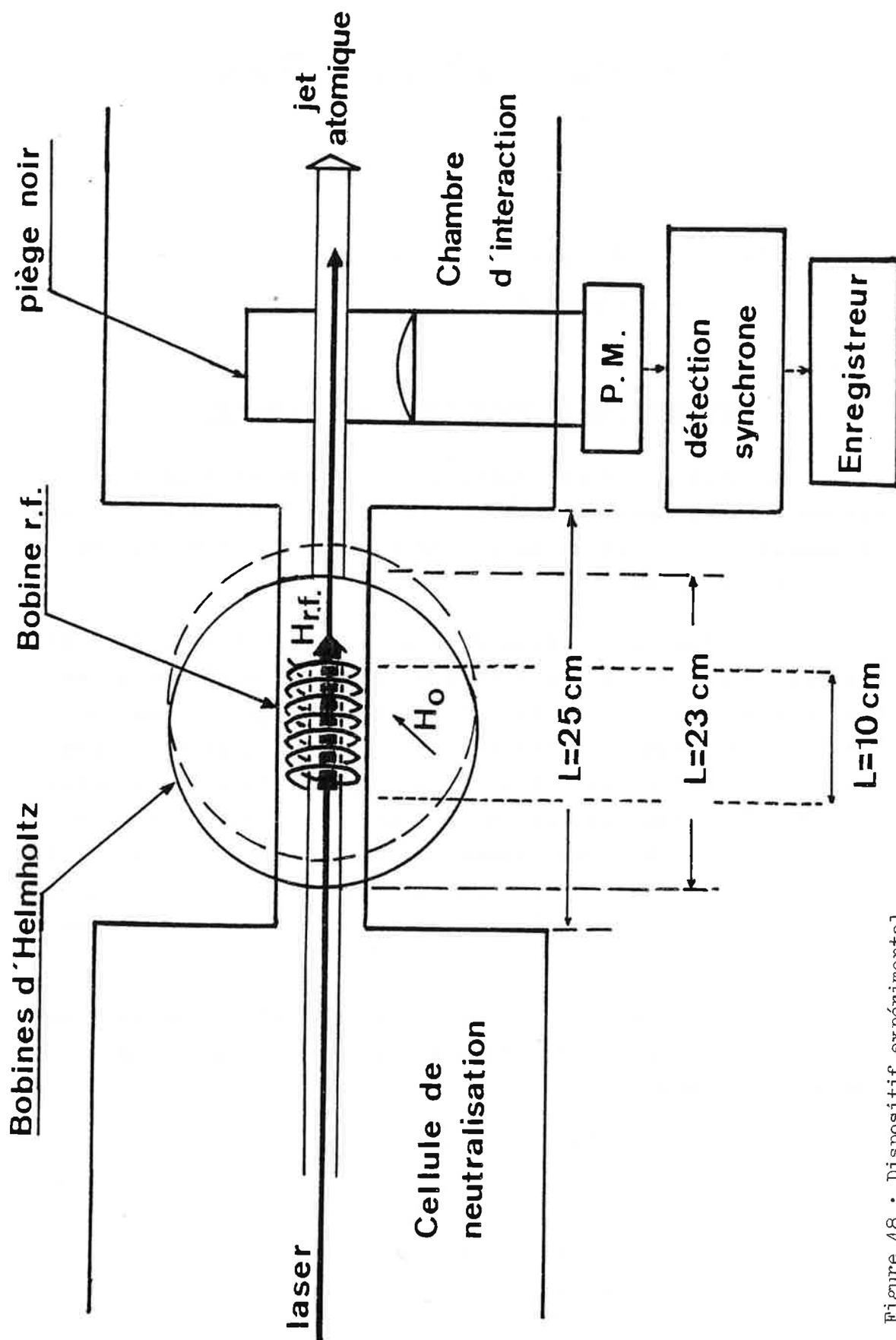


Figure 48 : Dispositif expérimental utilisé pour la production des champs magnétiques et la détection du signal de fluorescence.

L'expression théorique de l'amplitude du champ magnétique sur l'axe des faisceaux atomique et lumineux en fonction de la distance x par rapport au centre des bobines est donnée par la formule :

$$H_0\left(\frac{x}{R}\right) = \int_0^\pi \frac{1 - \frac{x}{R} \cos \theta}{\left(\frac{x^2}{R^2} - 2\frac{x}{R} \cos \theta + \frac{5}{4}\right)^{3/2}} d\theta$$

R étant le rayon des bobines.

L'amplitude théorique de H_0 est représentée en figure 49; le champ est homogène sur une longueur de 10 cm de part et d'autre du centre des bobines. La valeur mesurée au centre est égale à 10 gauss lorsque l'intensité du courant qui circule dans les bobines est 1 ampère.

Le champ magnétique est balayé par variation linéaire du courant continu qui alimente les bobines. Un inverseur permet de changer le sens du courant dans les bobines, ce qui permet aussi de tourner le champ magnétique d'un angle π . Pendant les enregistrements, nous n'avons pas dépassé une intensité de courant de l'ordre de ± 7 A, ce qui correspond à une amplitude de H_0 voisine de 70 gauss.

Le champ radiofréquence est produit par un solénoïde long d'une dizaine de centimètres, centré sur le jet atomique. Le champ radiofréquence vu par les atomes est donc toujours perpendiculaire au champ statique H_0 . Ce solénoïde est alimenté par un générateur de radiofréquence commercial (modèle Rolide et Schwartz SMS 0,4-1040 MHz) accordable, suivi d'un amplificateur linéaire large bande pouvant fournir une puissance de 40 W. Une modulation par des signaux carrés est appliquée à la tension de sortie du générateur radiofréquence. Le signal de fluorescence est alors détecté en phase avec cette modulation par un amplificateur à détection synchrone.

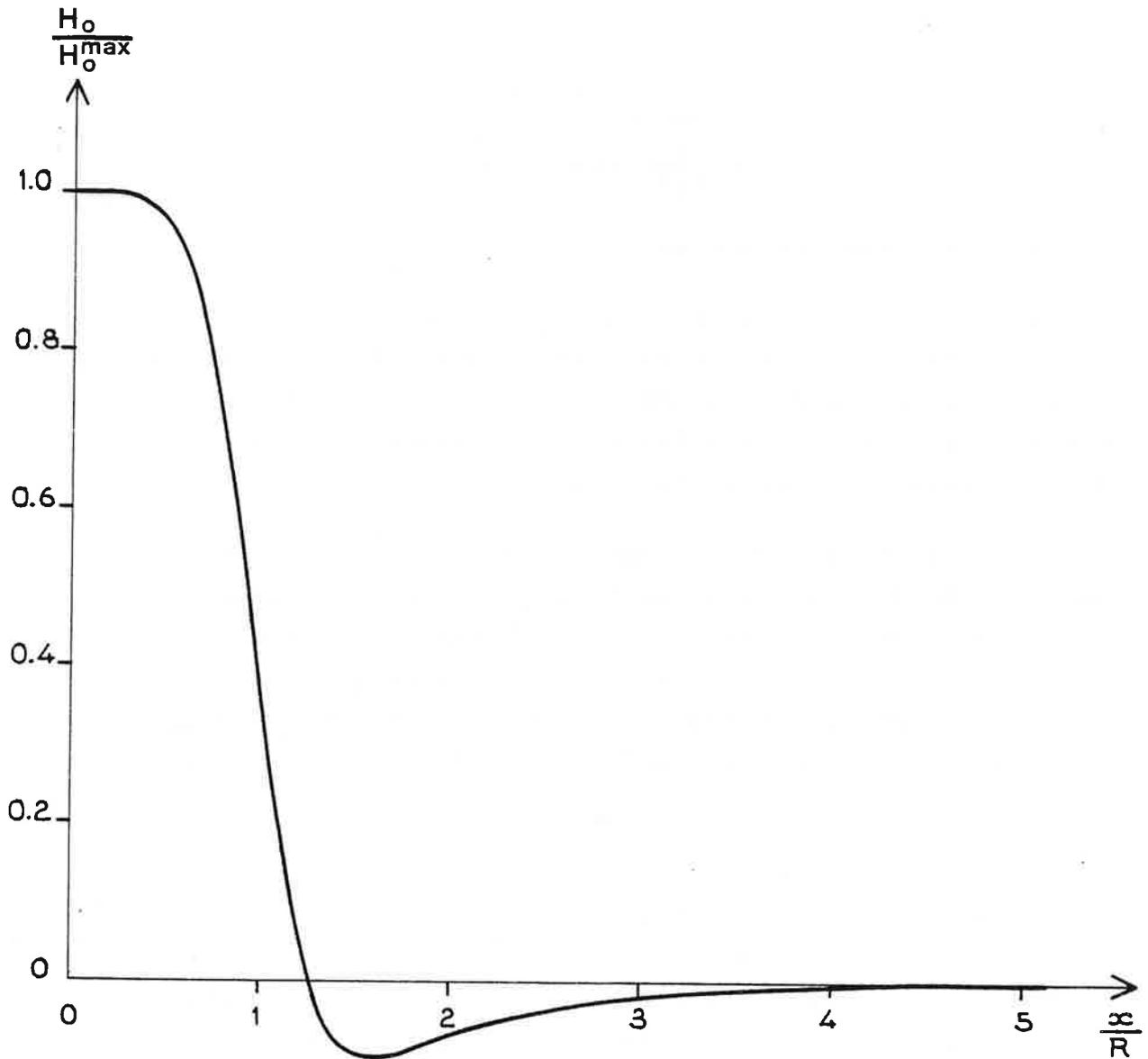


Figure 49

Variation de l'amplitude du champ magnétique statique avec la distance.

Le champ magnétique terrestre est soigneusement compensé à l'aide de boucles de courant entourant tout le jet atomique (voir chapitre V), ceci afin de contrôler les différents paramètres de l'expérience.

D'autre part, la région où sont produits les champs magnétiques ainsi que la zone de détection de la fluorescence sont entourées par une enveloppe de mu-métal. Le mu-métal entourant les bobines de Helmholtz se magnétise après chaque balayage de courant dans les bobines. Il est donc nécessaire, avant tout enregistrement, de le démagnétiser comme il sera expliqué dans le paragraphe qui suit.

L'excitation du jet atomique est assurée par un laser à colorant monomode continu (Coherent Radiation 599) pompé par un laser Kr^+ (CR 3000 K). La fréquence d'émission du laser est balayée pas à pas et contrôlée par le sigmamètre qui a été déjà décrit au chapitre III. L'intensité du faisceau et son état de polarisation sont ajustés à l'aide d'une lame demi-onde et d'un prisme de Glan. Le faisceau émergent du prisme de Glan est généralement polarisé dans une direction verticale. L'angle que fait le champ statique H_0 avec cette direction est modifié à volonté par une rotation des bobines de Helmholtz autour de l'axe du jet atomique.

La fluorescence du jet atomique excité est collectée avec les mêmes précautions que celles déjà décrites au chapitre V. Seul le blindage magnétique de la zone de détection a été ajouté ; ce blindage est destiné à annuler les champs parasites de directions et intensités mal connues (champ terrestre résiduel et champ de fuite des bobines de Helmholtz).

Lorsque l'excitation est réalisée en lumière polarisée circulairement (σ^+ ou σ^-), le faisceau laser doit être introduit par l'arrière de l'appareil, et se trouve ainsi propagé en sens contraire du jet atomique, ceci en raison de la présence du prisme à réflexion totale dans l'optique

d'entrée principale (voir description du dispositif expérimental au chapitre III).

D. EXPERIENCE REALISEE EN CHAMP MAGNETIQUE STATIQUE

Dans ce paragraphe, nous exposons les résultats des expériences entreprises à l'aide du seul champ magnétique statique \vec{H}_0 .

Le signal de fluorescence émis par le jet atomique rapide excité colinéairement est examiné en fonction de l'amplitude et de la direction du champ statique qui lui est appliqué avant l'entrée de la région de détection de la fluorescence. Le principe de l'expérience sera décrit en premier lieu ; cette description sera suivie de l'exposé de la procédure expérimentale mise en oeuvre pour effectuer l'expérience et des principaux résultats obtenus. Une modélisation théorique simple de l'expérience nous permettra enfin d'expliquer les caractéristiques principales des signaux observés.

1) Principe de l'expérience

Les atomes sont soumis au processus de pompage optique tout le long du trajet du jet atomique depuis sa création (située en moyenne au centre de la cellule d'échange de charge) jusqu'à la détection de la fluorescence (centre de la lentille collectrice de lumière placée au dessus du photomultiplicateur). La longueur de ce trajet est de 60 cm.

Le pompage hyperfin qui vide le niveau résonnant s'accompagne d'un pompage Zeeman qui modifie la répartition de la population entre les sous-niveaux Zeeman de ce même niveau hyperfin. Il en résulte un alignement des moments magnétiques des atomes dans l'état fondamental [50][51][52].

Lorsque les atomes traversent le champ magnétique statique H_0 , leurs moments magnétiques précessent autour de \vec{H}_0 , avec une vitesse angulaire proportionnelle à l'amplitude du champ. L'état magnétique des atomes est examiné à la sortie du champ statique sur la fluorescence induite par la lumière laser.

Lorsque l'amplitude du champ H_0 est balayée, des modulations apparaissent sur le signal de fluorescence, à la fréquence de Larmor et à la fréquence double correspondant aux cohérences induites. La structure modulée qu'on observe dépend fortement de l'angle entre le champ \vec{H}_0 et la direction de polarisation \vec{P} du laser.

On a représenté en figure 50.a à 50.d, l'allure du signal de fluorescence qu'on s'attend à observer pour différents angles β entre \vec{H}_0 et \vec{P} dans les cas où le laser est polarisé rectilignement et accordé en fréquence sur la transition hyperfine $(F=2, ^2S_{1/2}) \rightarrow (F'=1, ^2P_{1/2})$.

Dans la première transition, l'alignement des moments atomiques dans l'état fondamental se traduit par une accumulation d'atomes sur les états magnétiques $m_F=+2$ et $m_F=-2$. On s'attend ainsi à observer une modulation du signal de fluorescence à la fréquence de Larmor ω_0 pour des angles β faibles et à la fréquence double lorsque β est égal à 90° . Une interprétation théorique des modulations observées sera donnée au paragraphe V.3.

On peut faire remarquer dès à présent que l'originalité de cette expérience tient à l'utilisation d'une excitation colinéaire au jet atomique, ce jet étant lui-même rapide et très monocinétique. Une expérience reposant sur le même principe avait été réalisée par Walther et Shieder en 1974 sur un jet thermique excité par deux faisceaux lasers croisés en deux endroits différents entre lesquels les atomes étaient soumis à un champ magnétique statique [53].

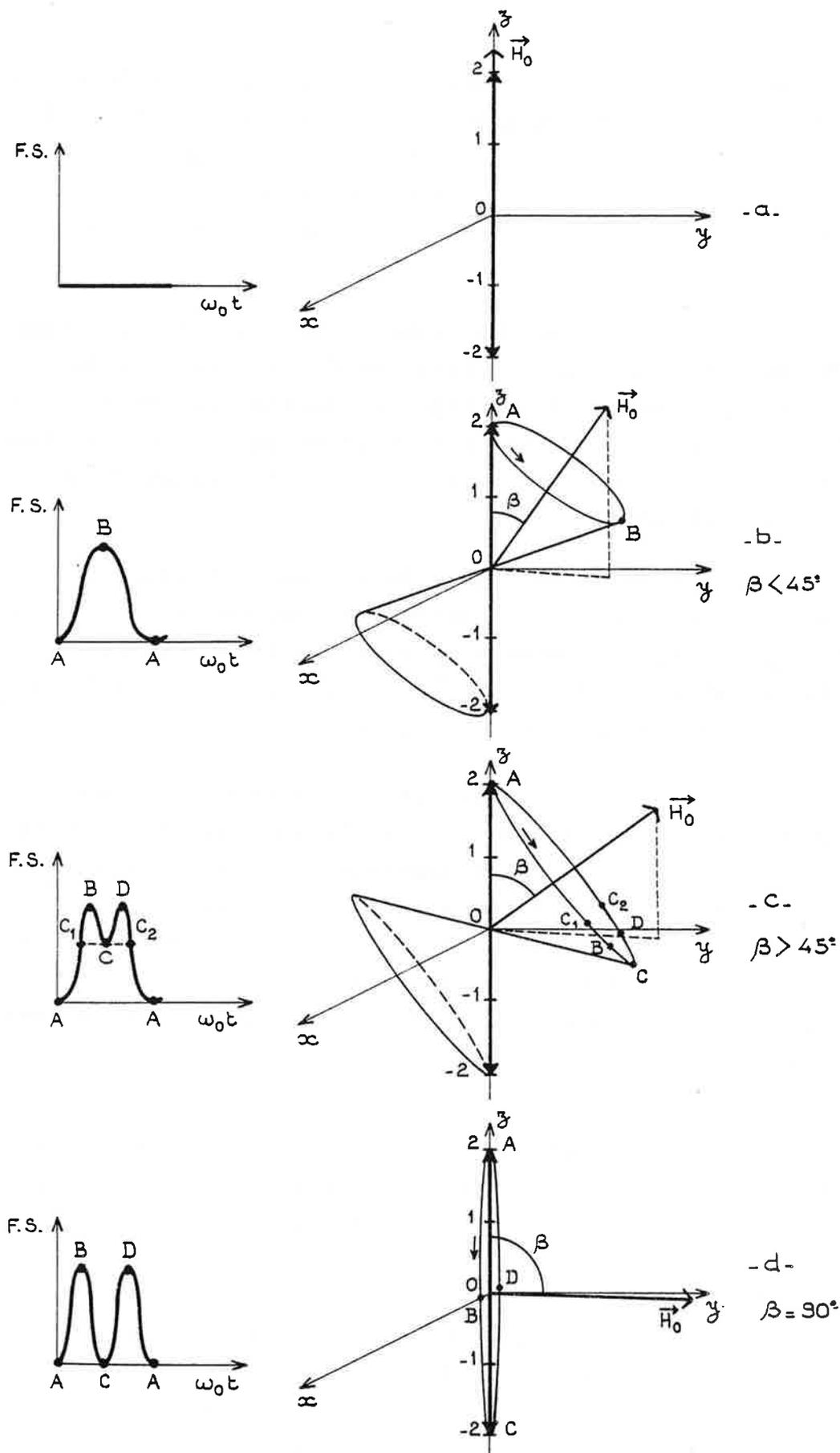


Figure 50 : Signal de fluorescence prévu pour différents angles de précession des moments magnétiques atomiques autour de \vec{H}_0 .

Mais la large distribution des vitesses longitudinales dans les jets thermiques avait pour effet de brouiller complètement les oscillations du signal de fluorescence dès que l'amplitude du champ dépassait quelques dixièmes de gauss.

2) Résultats expérimentaux

Nous avons étudié expérimentalement toutes les composantes hyperfines de la raie D_1 du Na et, de façon plus particulière, les transitions $F=1 \rightarrow F'=1$ et $F=2 \rightarrow F'=1$. En effet, l'alignement des dipôles magnétiques atomiques est plus facile à observer lorsque certains sous-niveaux Zeeman ne peuvent pas être excités par la lumière laser. C'est ainsi que le sous-niveau Zeeman $m_F=0$, $F=1$ (respectivement $m_F = \pm 2$, $F=2$) de la transition $F=1 \rightarrow F'=1$ (respectivement $F=2 \rightarrow F'=1$) n'est pas excité (transitions interdites) alors que les autres sous-niveaux sont dépeuplés à son profit et au profit du niveau hyperfin non résonnant.

En revanche, la transition $F=1 \rightarrow F'=2$ ne présente aucun sous-niveau "piège" et aucune modulation importante du signal de fluorescence n'est observée même lorsque l'amplitude du champ atteint quelques dizaines de gauss.

Pour être dans de bonnes conditions d'observation de l'alignement, la puissance lumineuse doit être suffisante pour produire un pompage efficace des atomes avant d'atteindre le champ magnétique. Cependant, elle ne doit pas être non plus trop intense afin de ne pas détruire l'alignement du dipôle magnétique obtenu à la sortie du champ magnétique, pendant le vol des atomes de ce point jusqu'à la zone de détection. La longueur de ce trajet est réduite au minimum matériellement réalisable ; elle est beaucoup plus courte que celle sur laquelle est établi le champ (5 cm environ contre 20 cm) et que celle sur laquelle s'effectue le pompage hyperfin (~ 35 cm).

Le niveau optimum de la puissance laser dépend donc des caractéristiques du montage expérimental utilisé. Pour le notre, il est apparu expérimentalement que des puissances laser allant de 0,5 mW à 5 mW pouvaient convenir. Pour ces puissances, on observe l'apparition d'une dépression au centre du profil de la raie étudiée ; comme on l'a vu au chapitre V, cette dépression indique que les pompes optiques hyperfines et Zeeman sont devenus si efficaces que la fluorescence est minimale lorsque le laser est exactement accordé sur la transition.

Le champ magnétique terrestre est soigneusement compensé comme indiqué au chapitre B, l'amplitude du champ statique H_0 étant réglée à zéro, et la fréquence du laser étant accordée au centre de la raie de résonance. On s'assure alors que le signal de fluorescence enregistré est minimal quand le champ terrestre est bien compensé (les atomes "piégés" dans les sous-niveaux Zeeman non excitables ne pouvant plus retourner dans les sous-niveaux excitables pour contribuer à la fluorescence). L'angle β entre la direction de polarisation et le champ statique \vec{H}_0 est ensuite ajusté précisément par rotation de l'ensemble des bobines de Helmholtz. Enfin, l'amplitude du champ magnétique est balayée de façon continue.

Les enregistrements de la fluorescence recueillie par le photomultiplicateur pendant ce balayage, pour différentes valeurs de β , sont présentées en figures 51 et 52. On voit apparaître des oscillations périodiques importantes, modulées par une structure de noeuds et de ventres. S'il est facile d'expliquer empiriquement les oscillations périodiques qu'on observe (voir figure 50), l'apparition de cette structure de battements ne peut être justifiée simplement sans l'élaboration du modèle théorique qui fait l'objet du paragraphe suivant.

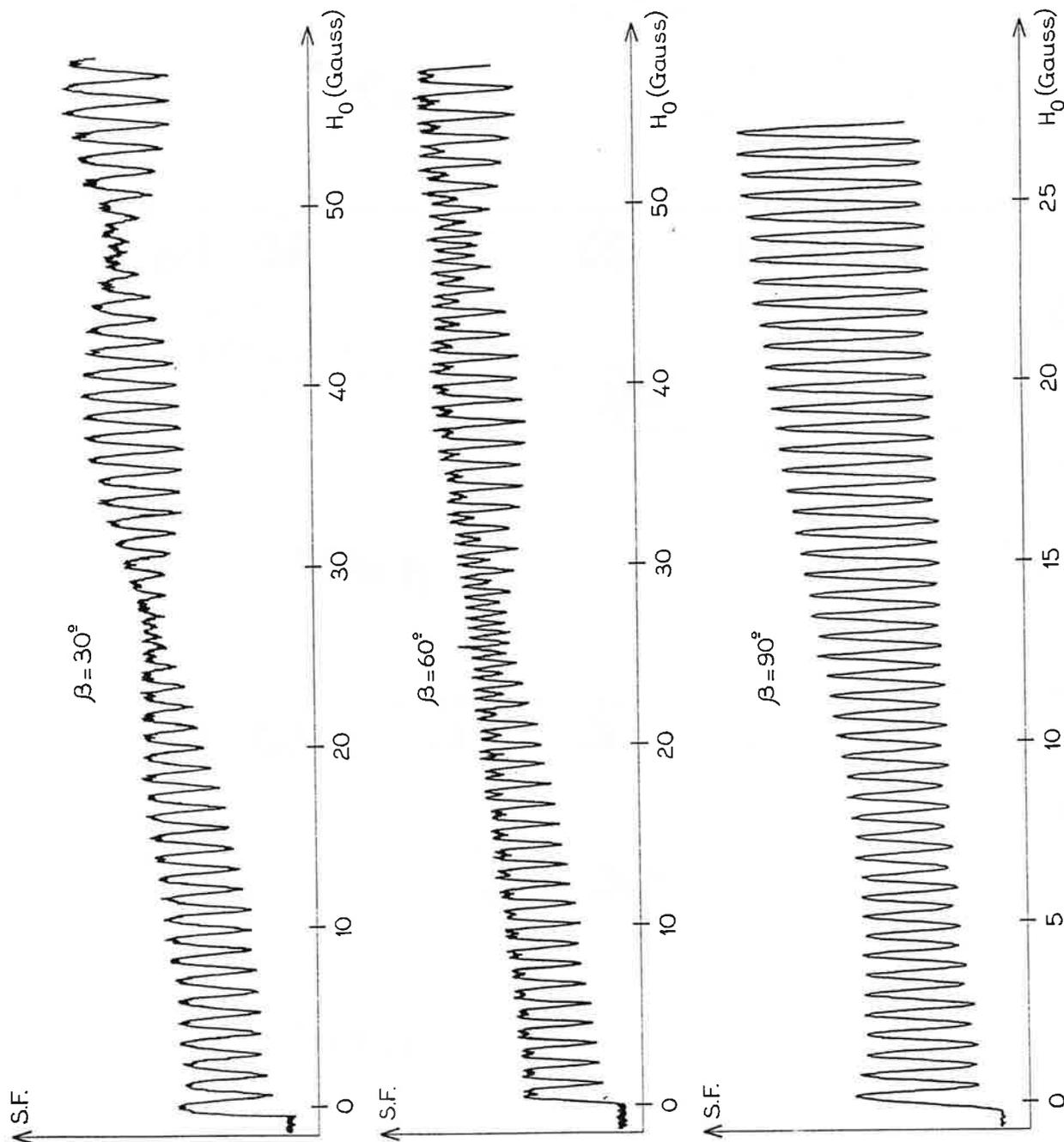


Figure 51 : Signal de fluorescence en fonction de l'amplitude du champ magnétique dans le cas de la transition $F=1 \rightarrow F'=1$.

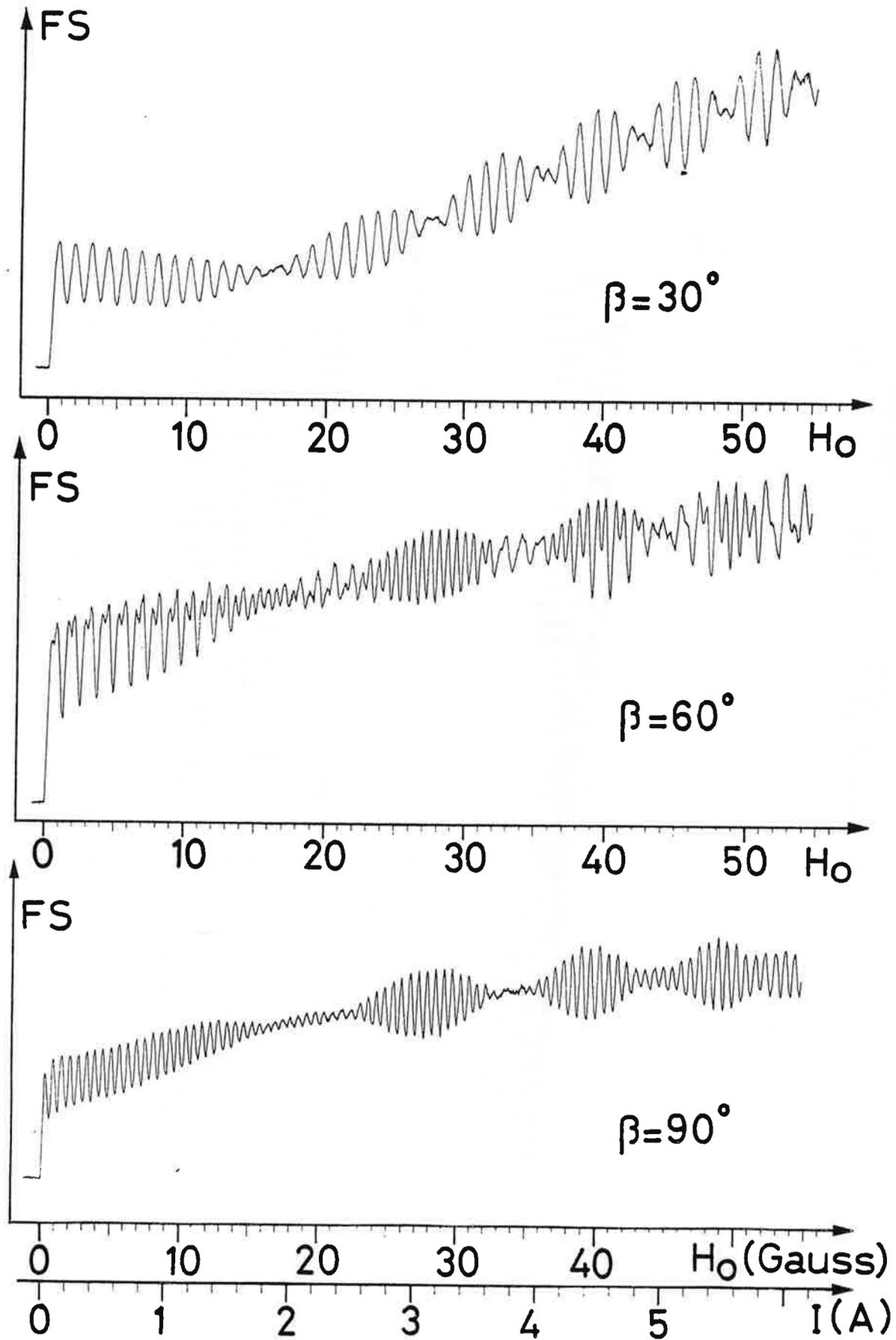


Figure 52 : Signal de fluorescence en fonction du champ magnétique pour la transition $F=2 \rightarrow F'=1$.

3) Interprétation théorique des signaux observés

a) Principe du calcul

Le principe du calcul est le suivant : le jet atomique est divisé en trois régions (figure 53).

Dans la première région, les atomes n'interagissent qu'avec la lumière laser. Dans la seconde, on néglige l'action de la lumière et on ne prend en considération que l'influence du champ magnétique qu'on suppose parfaitement homogène tout le long du jet atomique dans cette région. L'interaction avec le champ a lieu pendant un intervalle de temps τ égal à environ 1 microseconde (10^{-6} s), dans les conditions de l'expérience (vitesse du jet atomique : $2 \cdot 10^5$ m/s, diamètre des bobines de Helmholtz : 23 cm). Le signal de fluorescence émis par le jet est examiné immédiatement après la sortie du champ magnétique, dans la région III qui est supposée avoir une longueur négligeable.

Nous allons exposer le principe du calcul sur l'exemple de la transition hyperfine $F=2 \rightarrow F'=1$, excitée par un faisceau laser polarisé rectilignement. Le même calcul peut être transposé sans difficulté aux deux autres composantes hyperfines de la raie D_1 qui sont aussi soumises au pompage Zeeman, ($F=1 \rightarrow F'=1$ et $F=2 \rightarrow F'=2$), pour une polarisation rectiligne ou circulaire du laser.

Dans le cas de la transition hyperfine $F=2 \rightarrow F'=1$, en lumière polarisée π , le pompage optique Zeeman accumule les atomes du niveau hyperfin $F=2$ du fondamental dans les sous-niveaux Zeeman $m_F = \pm 2$. Le système atomique, à l'entrée du champ magnétique, peut donc être décrit par la matrice densité :

$$\rho(0) = \rho_{11} \text{ II} + (\rho_{22} - \rho_{11}) \begin{pmatrix} 1 & & \\ & 0 & 0 \\ & & 0 \\ 0 & & & 1 \end{pmatrix} + (\rho_{00} - \rho_{11}) \begin{pmatrix} 0 & & \\ & 0 & 0 \\ & & 1 \\ 0 & & & 0 \end{pmatrix} \quad (1)$$

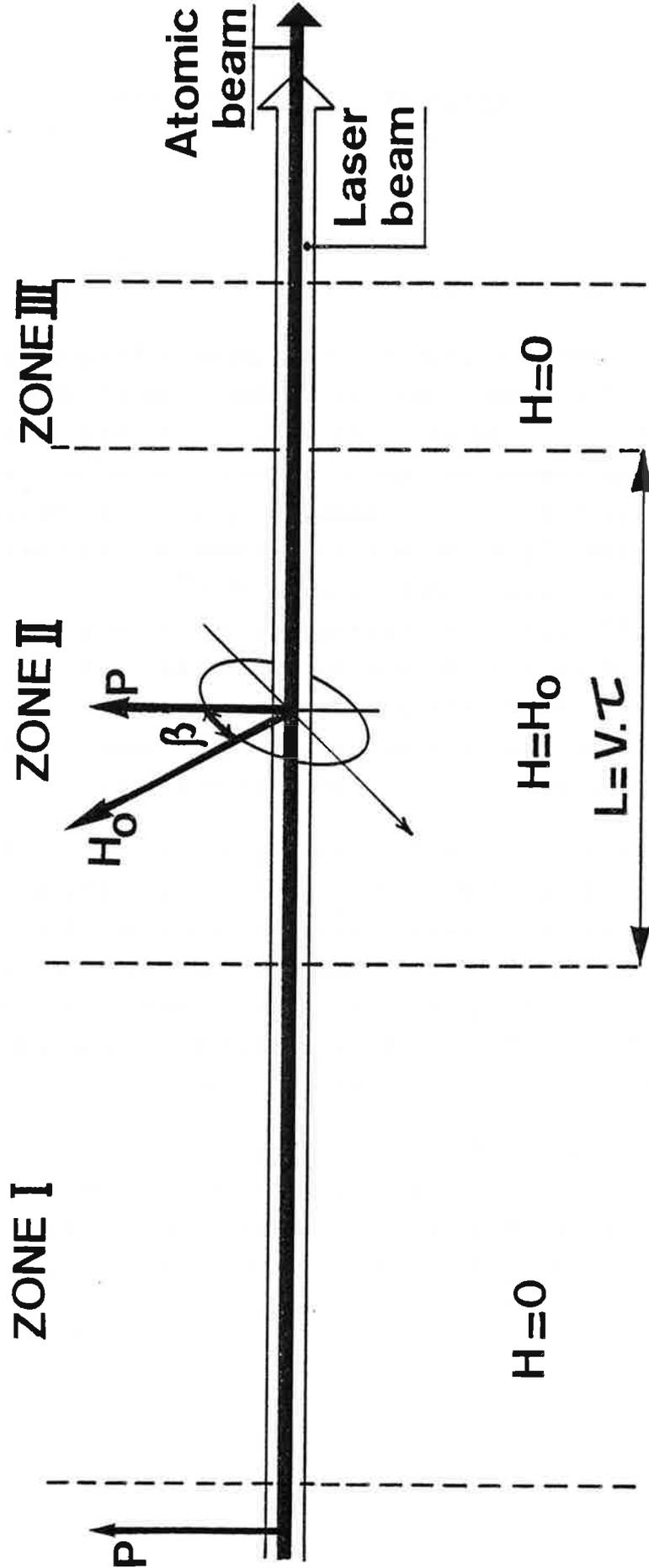


Figure 53 : Schéma de principe du dispositif expérimental : seul un faisceau laser est colinéaire avec le jet d'atomes rapides. La zone I commence au centre de la cellule d'échange de charges, là où le faisceau d'atomes neutres est créé. La fluorescence du jet est détectée à la fin de la zone III. On suppose que le champ magnétique est constant tout au long de la Zone II et nul en dehors. La longueur de la Zone II est égale au diamètre des bobines de Helmholtz (23 cm).

Les éléments de matrice ρ_{ii} représentent les populations des niveaux Zeeman indicés "i", I est la matrice identité. Nous poserons pour toute la suite du calcul :

$$\Delta\rho_0 = \rho_{00} - \rho_{11} \quad \text{et} \quad \Delta\rho_2 = \rho_{22} - \rho_{11}$$

Le premier terme de l'équation (1) est insensible à l'action du champ magnétique. Il en résultera un fond constant. C'est donc l'évolution du second et du troisième terme de ρ , en présence du champ magnétique, qui est responsable de l'allure du signal de fluorescence détecté.

Dans le cas général, la direction de polarisation de la lumière et du champ magnétique font un angle β entre eux.

Dans la région I (figure 53), l'axe de quantification est confondu avec la direction de polarisation de la lumière (polarisation M). C'est dans la base d'états relative à cet axe de quantification que l'équation (1) de la page précédente a été établie.

Dans la région II, où le champ H_0 n'est pas nul, il est plus aisé d'écrire la matrice densité et son évolution dans un nouveau système de coordonnées où l'axe de quantification est la direction du champ H_0 . La rotation qui fait passer de l'ancien au nouveau système de coordonnées transforme la matrice densité $\rho(0)$ en $\rho'(0)$ qui est donnée par :

$$\rho'(0) = M(\beta) \cdot \rho(0) \cdot M(\beta)^* \quad (2)$$

Dans cette relation, $M(\beta)$ est la matrice de rotation d'un angle β autour de l'axe du faisceau. Les matrices de rotation pour $F=1$ ou 2 sont données en appendice à la fin du chapitre.

Dans le nouveau système de coordonnées, $\rho'(t)$ est stationnaire et l'équation de Schrödinger qui décrit son évolution sous l'action du champ statique H_0

$$i\hbar \frac{d}{dt} \rho'(t) = [H_0, \rho'(t)] \quad (3)$$

s'intègre facilement.

\mathcal{H} étant le hamiltonien effectif en champ faible. En intégrant cette équation, on trouve que les différents éléments de matrices de $\rho'(t)$ satisfont à :

$$\rho'_{ij}(t) = \rho'_{ij}(0) e^{-\frac{i}{\hbar}(E_i - E_j)t} \quad (4)$$

où $\rho'_{ij}(0)$ est la valeur de la composante (ij) à l'entrée du champ magnétique et E_i l'énergie du sous-niveau Zeeman de nombre quantique magnétique i .

Si on veut décrire l'interaction des atomes avec le champ en considérant qu'ils sont soumis à un effet Zeeman linéaire, on rendra bien compte des modulations périodiques de la fluorescence en fonction de l'angle β .

En revanche, le calcul n'expliquera en aucune manière la structure en noeuds et en ventres qui est observée pour tous les enregistrements. Pour y parvenir, il est nécessaire de calculer les valeurs propres E_i du hamiltonien à l'aide de la formule de Breit-Rabi. Dans ce calcul, on se contentera dans une bonne approximation, d'un développement à l'ordre 2 de cette formule. On verra, en effet, que ce développement est suffisant pour rendre compte de l'allure du signal de fluorescence pour les amplitudes de champs magnétiques que nous avons explorées (inférieures à 50 gauss).

En prenant l'énergie du niveau Zeeman $|F=2, m_F=0\rangle$ comme origine de l'échelle des énergies, on trouve alors :

$$\begin{aligned} E_{\pm 2} &= \pm 2\hbar\omega_0 - 4\hbar\Delta\omega_0 \\ E_{\pm 1} &= \pm\hbar\omega_0 - \hbar\Delta\omega_0 \\ E_0 &= 0 \end{aligned} \quad (5)$$

où
$$\hbar\omega_0 = \frac{x}{2I+1}\Delta W - \frac{\mu_I}{I}H_0$$

$$\hbar\Delta\omega_0 = \left(\frac{x}{2I+1}\right)^2 \Delta W$$

$$\text{et } x = \frac{\mu_I/I - \mu_J/J}{\Delta W} H_0 \sim \frac{g_J \mu_0}{h \Delta \nu_{\text{HFS}}} H_0 \quad \left(g_J = 2 \text{ pour } {}^{23}\text{Na} \right)$$

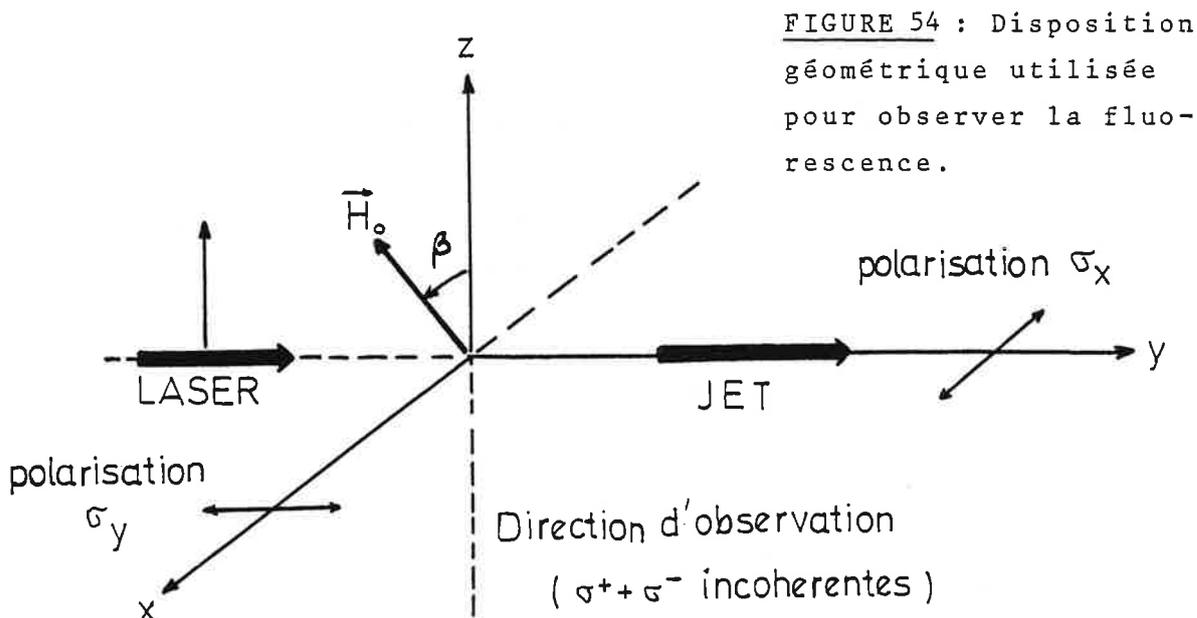
avec les notations indiquées au paragraphe VI.B.

La durée du temps de vol des atomes à l'intérieur du champ magnétique est τ . A la sortie de la région II, le système atomique est alors décrit par la matrice densité $\rho'(t=\tau)$, obtenue à l'aide des équations (4) et (5). Dans le premier système de coordonnées, il est décrit par la matrice $\rho(\tau)$, qu'on peut déduire de $\rho'(\tau)$ par la rotation inverse de la première rotation (2) :

$$\rho(\tau) = M(\beta) * \rho'(\tau) . M(\beta) . \quad (6)$$

b) Signal de fluorescence

La figure 54 complète la figure 48 en précisant la partie détection de l'expérience. Le signal de fluorescence émis par le jet atomique est obtenu par une détection non cohérente (pas de polariseur devant le photomultiplicateur) dans la direction O_z , perpendiculaire au jet atomique et au faisceau laser. La fluorescence observée est donc une superposition incohérente de lumière polarisée σ^+ et σ^- .



La lumière de fluorescence $S(\vec{e}_q, t)$ émise à l'instant t dans une direction donnée avec une polarisation \vec{e}_q est décrite dans le formalisme de la matrice densité par l'expression [54] :

$$S(e_q, t) \neq T_r \rho_m(t) \Lambda_q \quad (7)$$

où $\rho_m(t)$ est la matrice densité décrivant le système réduit à l'état excité et Λ_q l'opérateur de détection :

$$\Lambda_q = \sum_{\mu} D_q |\mu\rangle \langle \mu| D_q \quad (8)$$

D étant l'opérateur dipole électrique de l'atome.

Sous une forme développée, (7) peut encore s'écrire :

$$S(e_q, t) \neq \sum_{\substack{m, m' \\ \mu}} \langle \mu | D_q | m \rangle \langle \mu | D_q | m' \rangle^* \rho_{mm'}(t) \quad (9)$$

Dans cette expression, m et m' représentent les sous-niveaux Zeeman de l'état excité et μ les sous-niveaux du fondamental.

Les composantes cartésiennes D_x et D_y s'écrivent en fonction des composantes standard de l'opérateur vectoriel $D^{(1)}$:

$$D_x = -\frac{1}{\sqrt{2}} \left(D_{+1}^{(1)} - D_{-1}^{(1)} \right) \quad (10)$$

et
$$D_y = \frac{i}{\sqrt{2}} \left(D_{+1}^{(1)} - D_{-1}^{(1)} \right)$$

avec
$$D_{+1}^{(1)} = -\frac{1}{\sqrt{2}} D_+ \quad \text{et} \quad D_{-1}^{(1)} = +\frac{1}{\sqrt{2}} D_-$$

Dans l'écriture des projections de l'équation (7), vont apparaître des éléments de matrice du type :

$$\langle J_m | D_q^{(1)} | J' \mu \rangle = (-1)^{J-m} C_{m\mu}^{JJ'} \langle J || D^{(1)} || J' \rangle$$

Le terme $C_{m\mu}^{JJ'}$ est une notation abrégée du symbole $3j$ de l'algèbre des moments angulaires :

$$C_{m\mu}^{JJ'} = \begin{pmatrix} J & 1 & J' \\ -m & q & \mu \end{pmatrix}$$

$D^{(1)}$ étant hermitique, on pourra poser :

$$\langle J || D^{(1)} || J' \rangle = (-1)^{J-J'} \langle J' || D^{(1)} || J \rangle$$

et on utilisera le fait que les probabilités relatives des transitions Zeeman induites par la polarisation de la lumière, dans le système considéré, sont proportionnelles aux coefficients $3j$: $\left(C_{m\mu}^{JJ'} \right)^2 = \left(C_{\mu m}^{J'J} \right)^2$. Les probabilités de transition pour les différentes composantes hyperfines de la raie D_1 et de la raie D_2 (pour $I = \frac{3}{2}$) sont données dans l'appendice II.

On peut ainsi montrer que le signal de fluorescence, pour toutes les composantes de la raie D_1 , est indépendant des cohérences Zeeman induites par le rayonnement dans l'état excité et que dans l'équation (9), seuls les termes pour lesquels $m=m'$ contribuent au signal de fluorescence. On trouve alors que ce signal ne dépend que des populations des sous-niveaux de l'état excité.

Les résultats des calculs effectués sont résumés dans le tableau ci-après qui donne l'expression des signaux détectés en fonction des populations des sous-niveaux excités pour différentes polarisations de la lumière de fluorescence. (Voir page suivante).

c) Expressions théoriques des signaux observés pour les différentes composantes de la raie D_1

Les signaux de fluorescence correspondant aux transitions $F=1 \rightarrow F'=1$ et $F=2 \rightarrow F'=1,2$ ont été étudiés expérimentalement et théoriquement pour des polarisations aussi bien rectilignes que circulaires de la lumière excitatrice et pour des valeurs quelconques de l'angle β entre l'axe de quantification du système et la direction du champ magnétique.

Nous donnerons ici les résultats obtenus pour la transition $F=2 \rightarrow F'=1$, les autres transitions étant étudiées dans l'appendice III.

Polarisation détectée	Fluorescence à partir de l'état excité $F'=1$	Fluorescence à partir de l'état excité $F'=2$
π, σ_x, σ_y	$S(t) = 20 \left(\rho_{11}^{exc} + \rho_{00}^{exc} + \rho_{-1-1}^{exc} \right)$	$S(t) = 20 \left(\rho_{22}^{exc} + \rho_{11}^{exc} + \rho_{00}^{exc} + \rho_{-1-1}^{exc} + \rho_{-2-2}^{exc} \right)$
σ^+	$= 30 \rho_{11}^{exc} + 20 \rho_{00}^{exc} + 10 \rho_{-1-1}^{exc}$	$= 10 \rho_{11}^{exc} + 20 \rho_{00}^{exc} + 30 \rho_{-1-1}^{exc} + 40 \rho_{-2-2}^{exc}$
σ^-	$= 10 \rho_{11}^{exc} + 20 \rho_{00}^{exc} + 30 \rho_{-1-1}^{exc}$	$= 40 \rho_{22}^{exc} + 30 \rho_{11}^{exc} + 20 \rho_{00}^{exc} + 10 \rho_{-1-1}^{exc}$
$\sigma^+ + \sigma^-$	$= 40 \left(\rho_{11}^{exc} + \rho_{00}^{exc} + \rho_{-1-1}^{exc} \right)$	$= 40 \left(\rho_{22}^{exc} + \rho_{11}^{exc} + \rho_{00}^{exc} + \rho_{-1-1}^{exc} + \rho_{-2-2}^{exc} \right)$

On considère tout d'abord le cas où le laser est polarisé rectilignement dans la direction de l'axe de quantification (excitation π). Le signal de fluorescence détecté, en fonction des populations des sous-niveaux Zeeman du fondamental s'exprime comme :

$$S(\tau) = 20\rho_{00}^f(\tau) + 15\rho_{11}^f(\tau) + 15\rho_{-1-1}^f(\tau)$$

En appliquant à cette transition le calcul exposé plus haut, pour un angle β quelconque, et en notant : $\Delta\rho_0 = \rho_{00} - \rho_{11}$ et $\Delta\rho_2 = \rho_{22} - \rho_{11}$, on aboutit à l'expression :

$$\begin{aligned} S(\tau) = & 30\cos^2\beta \cdot \sin^2\beta \cdot \cos(\omega_0 \tau) \cdot \cos(\Delta\omega_0 \tau) \cdot \left\{ \cos^2\Delta\omega_0 \tau (6\Delta\rho_0 \sin^2\beta \right. \\ & \left. + 2\Delta\rho_2 \sin^2\beta - 8\Delta\rho_2) + 6\Delta\rho_2 - 2\Delta\rho_2 \sin^2\beta + \Delta\rho_0 - 6\Delta\rho_0 \sin^2\beta \right\} \\ & - \frac{15}{2} \sin^4\beta \cdot \cos(2\omega_0 \tau) \cdot \left\{ \cos(4\Delta\omega_0 \tau) \cdot (2\Delta\rho_2 - \Delta\rho_2 \sin^2\beta - \Delta\rho_0 \right. \\ & \left. + 3\Delta\rho_0 \cdot \cos^2\beta) + \Delta\rho_2 \cdot \sin^2\beta - 3\Delta\rho_0 \cdot \cos^2\beta \right\} + \text{terme constant} \end{aligned} \quad (11)$$

Le signal détecté présente, comme on s'y attend, une modulation à la fréquence de Larmor ω_0 et à la fréquence double $2\omega_0$. De plus, il est proportionnel à $\sin^2\beta$, ce qui explique bien qu'aucune modulation ne soit observée lorsque β est nul. Des battements apparaissent pour certaines valeurs du champ magnétique. La modulation à la fréquence ω_0 est nulle pour :

$$\cos(\Delta\omega_0 \tau) = 0 \quad (12)$$

$$\text{et } \cos^2(\Delta\omega_0 \tau) = - \frac{\Delta\rho_2(6-2\sin^2\beta) + \Delta\rho_0(1-6\sin^2\beta)}{\sin^2\beta(2\Delta\rho_2 + 6\Delta\rho_0) - 8\Delta\rho_2}$$

Dans le cas où la puissance lumineuse utilisée est intense, on a : $\Delta\rho_0 = 0$, $\Delta\rho_2 \neq 0$ et donc :

$$\cos^2(\Delta\omega_0 \tau) = \frac{3 - \sin^2\beta}{4 - \sin^2\beta}$$

Lorsque β varie de 0 à $\frac{\pi}{2}$, la valeur de $\Delta\omega_0 \cdot \tau$ pour laquelle on a un noeud change très peu en passant de 30° à 35° environ. Pour $\beta = 0$, il survient pour $\Delta\omega_0 \cdot \tau = \frac{\pi}{6}$.

Dans le cas où la puissance lumineuse est faible, on peut montrer, en utilisant les probabilités relatives de transition données dans l'appendice II, que $\Delta\rho_0$ et $\Delta\rho_2$ sont reliés par la relation :

$$\Delta\rho_0 = -\frac{1}{3}\Delta\rho_2$$

et le signal peut être mis sous la forme suivante, à un terme constant près :

$$S(\tau) = -\frac{15}{2}\sin^2\beta \cdot \Delta\rho_2 \left\{ 4\cos^2\beta \cdot \cos(\omega_0 \cdot \tau) \cdot \cos(\Delta\omega_0 \cdot \tau) \left[8\cos(\Delta\omega_0 \cdot \tau) - \frac{17}{3} \right] + \sin^2\beta \cdot \cos(2\omega_0 \cdot \tau) \left[\frac{4}{3}\cos(4\Delta\omega_0 \cdot \tau) + 1 \right] \right\} \quad (13)$$

Dans le cas d'une puissance lumineuse faible, la modulation à la fréquence ω s'annule pour les valeurs : $\Delta\omega_0 \cdot \tau = \frac{\pi}{2}, 32,7^\circ$ et $147,3^\circ$ (modulo π).

La modulation à la fréquence $2\omega_0$ est nulle lorsque :

$$\cos(4\Delta\omega_0 \cdot \tau) = -\frac{\Delta\rho_2(1-\cos^2\beta) - 3\Delta\rho_0\cos^2\beta}{\Delta\rho_2(1+\cos^2\beta) + \Delta\rho_0(3\cos^2\beta-1)} \quad (14)$$

A puissance faible, cette condition mène à : $\cos(4\Delta\omega_0 \cdot \tau) = -\frac{3}{4}$ quelque soit β .

A puissance forte, elle conduit à :

$$\cos(4\Delta\omega_0 \cdot \tau) = -\frac{\sin^2\beta}{1+\cos^2\beta}$$

Nous avons aussi étudié expérimentalement l'effet d'une excitation laser polarisée circulairement σ^+ , le champ magnétique étant perpendiculaire à l'axe de quantification défini en figure 53 ($\beta = \frac{\pi}{2}$).

Le signal de fluorescence, en fonction des populations du niveau fondamental, est donné par :

$$\begin{aligned}
 S(\tau) &= 30\rho_{-2-2} + 15\rho_{-1-1} + 5\rho_{00} \\
 &= \frac{15}{2}\cos(\omega_0\tau) \cdot \cos(\Delta\omega_0\tau) \left\{ \cos^2(\Delta\omega_0\tau) \left[4\Delta\rho_{-1} - 4\Delta\rho_1 - 2\Delta\rho_2 \right] \right. \\
 &\quad \left. + 3(\Delta\rho_1 - \Delta\rho_{-1}) \right\} + \frac{15}{8}\cos(2\Delta\omega_0\tau) \left\{ \cos(4\Delta\omega_0\tau) \left[\Delta\rho_2 - 2\Delta\rho_0 \right] \right. \\
 &\quad \left. + \Delta\rho_2 - \Delta\rho_1 - \Delta\rho_{-1} \right\} \quad (15)
 \end{aligned}$$

On a utilisé les notations : $\Delta\rho_i = \rho_{ii} - \rho_{-2-2}$. De même que ci-dessus, on peut poursuivre le calcul dans deux directions :

- A puissance lumineuse forte, on doit avoir $\Delta\rho_0 = \Delta\rho_{-1} = 0$ et on peut montrer que $\Delta\rho_2 = \Delta\rho_1$. En posant $\Delta\rho = \Delta\rho_1 = \Delta\rho_2$, on trouve :

$$\begin{aligned}
 S(\tau) &= \frac{45}{2}\Delta\rho \left\{ 1 - \cos(\omega_0\tau) \cos(\Delta\omega_0\tau) \cos(2\Delta\omega_0\tau) \right. \\
 &\quad \left. - \frac{1}{12} \left[1 - \cos(2\omega_0\tau) \cos(4\Delta\omega_0\tau) \right] \right\} \quad (16)
 \end{aligned}$$

Pour les premières franges périodiques qui apparaissent en champ faible, on a $\Delta\omega_0\tau \sim 0$ et on peut écrire :

$$S(\tau) \sim \frac{45}{2}\Delta\rho \left\{ 1 - \cos(\omega_0\tau) - \frac{1}{12} \left[1 - \cos(2\omega_0\tau) \right] \right\} \sim -\frac{45}{2}\Delta\rho \cos(\omega_0\tau)$$

On observe effectivement que les premières franges ont une allure sinusoïdale. (Figure 56).

- A puissance lumineuse faible, un calcul simple permet de montrer que :

$$\begin{aligned}
 S(\tau) &= -\frac{15}{8}\Delta\rho_{-1} \left\{ 7\cos(\omega_0\tau) \cdot \cos(\Delta\omega_0\tau) \left[8\cos^2(\Delta\omega_0\tau) - 3 \right] \right. \\
 &\quad \left. + \frac{11}{4}\cos(2\omega_0\tau) \left[\frac{4}{3}\cos(4\Delta\omega_0\tau) + 1 \right] \right\} \quad (17)
 \end{aligned}$$

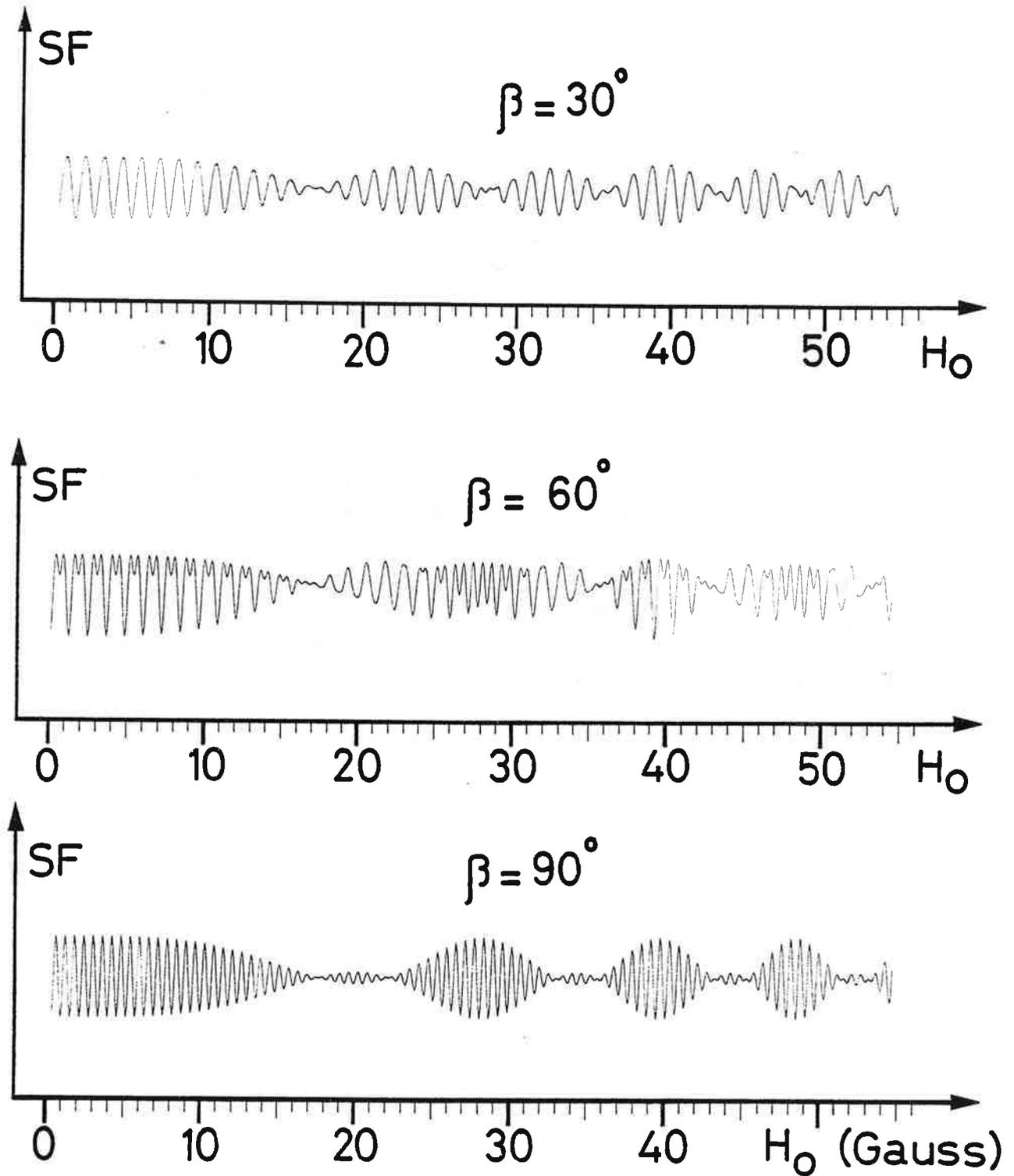


Figure 55

Signal de fluorescence calculé pour la transition $F=2 \rightarrow F'=1$ à partir de la formule (VI - 13).

Comme précédemment, on peut déduire les valeurs du champ magnétique pour lesquelles on observera des noeuds (ou des ventres).

4) Comparaison des résultats théoriques et expérimentaux

Les résultats théoriques obtenus pour la transition $F=2 \rightarrow F'=1$ sont illustrés par les courbes représentées dans la figure 55, en fonction de l'amplitude du champ H_0 , pour trois valeurs de l'angle β (30° , 60° et 90°). Ces courbes ont été tracées pour une puissance lumineuse faible (donc pompage optique faible) pour être comparées aux courbes expérimentales insérées dans la figure 52. Les courbes théoriques reproduisent bien les grandes oscillations périodiques observées expérimentalement, avec une modulation par une structure de noeuds et de ventres. Pour l'angle $\beta = 30^\circ$, la fréquence des oscillations est égale à la moitié de celle qu'on obtient pour $\beta = 90^\circ$. Ceci correspond bien au fait que dans la relation (13), le signal à l'harmonique $2\omega_0$ a une faible amplitude dans le premier cas, alors que le signal à l'harmonique ω_0 est nul dans l'autre.

Lorsque $\beta = 60^\circ$, on observe une situation intermédiaire pour laquelle les harmoniques ω_0 et $2\omega_0$ ont des amplitudes comparables. Les battements qui apparaissent pour certaines valeurs de l'amplitude du champ ne sont reproduits par les calculs qu'à condition que l'on tienne compte de la non linéarité de l'effet Zeeman. Par conséquent, la position des noeuds des battements (plus aisée à repérer que celle des ventres) peut conduire à une détermination approximative de la largeur en fréquence $\Delta\nu_{\text{HFS}}$ de la structure hyperfine du fondamental, les termes non linéaires dans l'expression de l'énergie des sous-niveaux Zeeman dépendant de cette structure.

La fréquence de Larmor ω_0 des franges observées dépend, quant à elle, du spin nucléaire de l'atome émetteur (ou de son moment magnétique nucléaire).

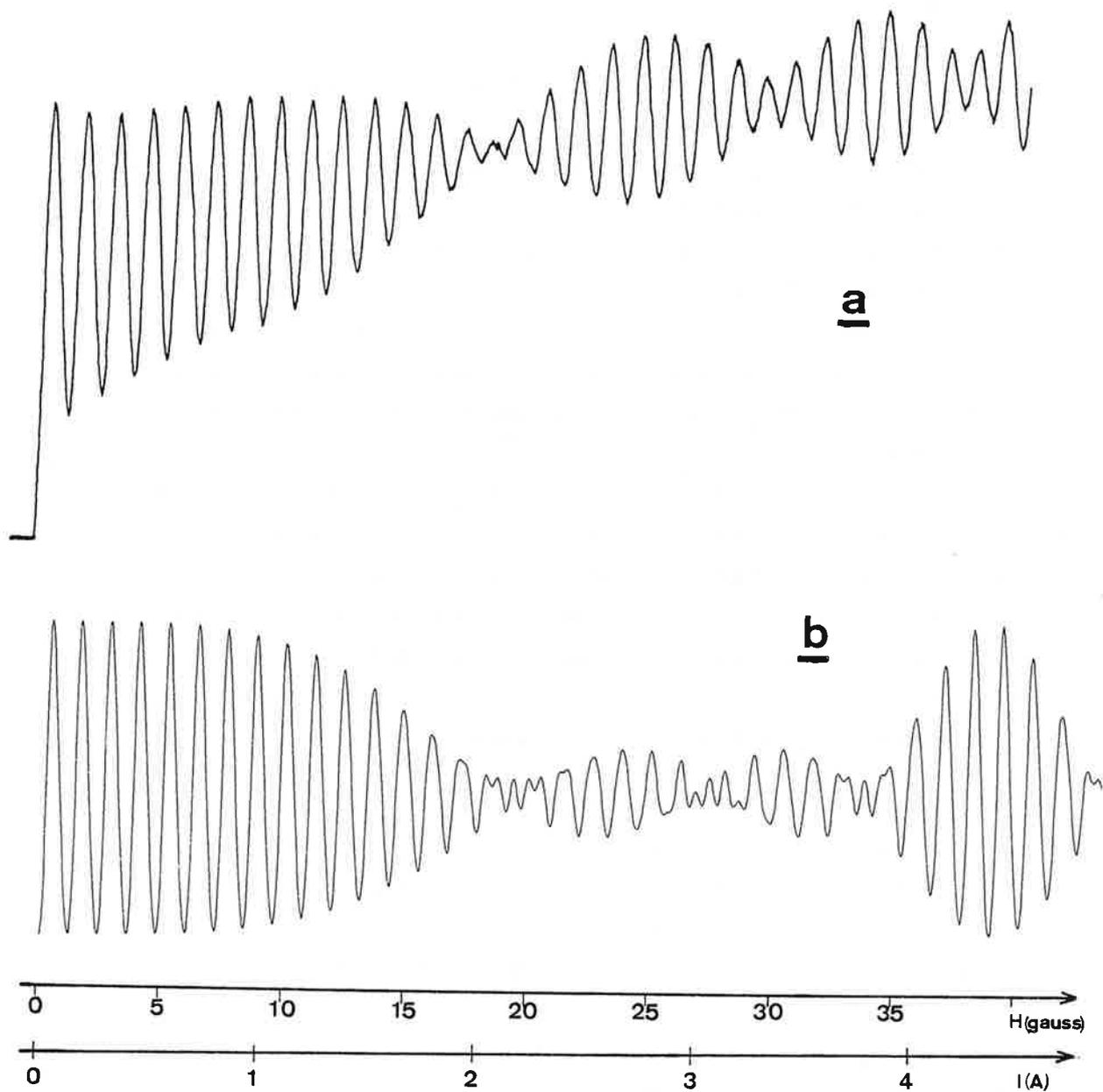


Figure 56

Signal de fluorescence observé dans le cas de la transition $F=2 \rightarrow F'=1$, excitée en lumière polarisée σ^+

a) Enregistrement expérimental,

b) Courbe calculée d'après la formule VI-(16).

Les signaux de fluorescence décrits jusqu'ici correspondent à des excitations en lumière polarisée rectilignement π . Le cas d'une excitation σ^+ (ou σ^-) a été aussi considéré, expérimentalement aussi bien que théoriquement. La figure 56.a reproduit un enregistrement réalisé avec le laser accordé sur la transition $F=2 \rightarrow F=1$ et polarisé σ^+ ($\beta = 90^\circ$). Cet enregistrement est comparé à la courbe théorique donnée par la relation (16), (figure 56.b).

Nous avons aussi étudié les transitions $F=1 \rightarrow F'=1$. Les courbes expérimentale et théorique obtenues pour la première transition, dans le cas $\beta = 60^\circ$, sont reproduites en figure 57. L'expression de $S(\tau)$, obtenue pour cette transition est peu compliquée (cf. appendice III) et donne un résultat en bon accord avec les courbes expérimentales.

Les signaux expérimentaux ont été enregistrés en fonction de l'intensité du courant circulant dans les bobines de Helmholtz tandis que les courbes théoriques ont été tracées en fonction de l'amplitude du champ. Une mesure directe au centre des bobines, dans l'axe du jet atomique, nous avait fait estimer le rapport H_0/I à 10 gauss/Ampère. En fait, le meilleur accord entre les échelles horizontales des courbes théoriques et expérimentales a été obtenu pour une valeur légèrement inférieure $H_0/I = 8,93$ gauss/Ampère. Ce résultat n'est pas surprenant. En effet, dans nos calculs, nous supposons que le champ magnétique est homogène sur toute la longueur de la région II, où il est appliqué, ce qui n'est pas tout à fait réalisé expérimentalement avec le dispositif utilisé (voir figure 49). Pour tenir compte de la légère décroissance de l'amplitude du champ vers les bords des bobines de Helmholtz, il faut prendre en compte non pas la valeur de H_0 au centre mais une valeur du champ magnétique moyennée sur toute la longueur de la région II. Il n'est donc pas déraisonnable de trouver un rapport $\frac{H_0}{I}$ légèrement inférieur.

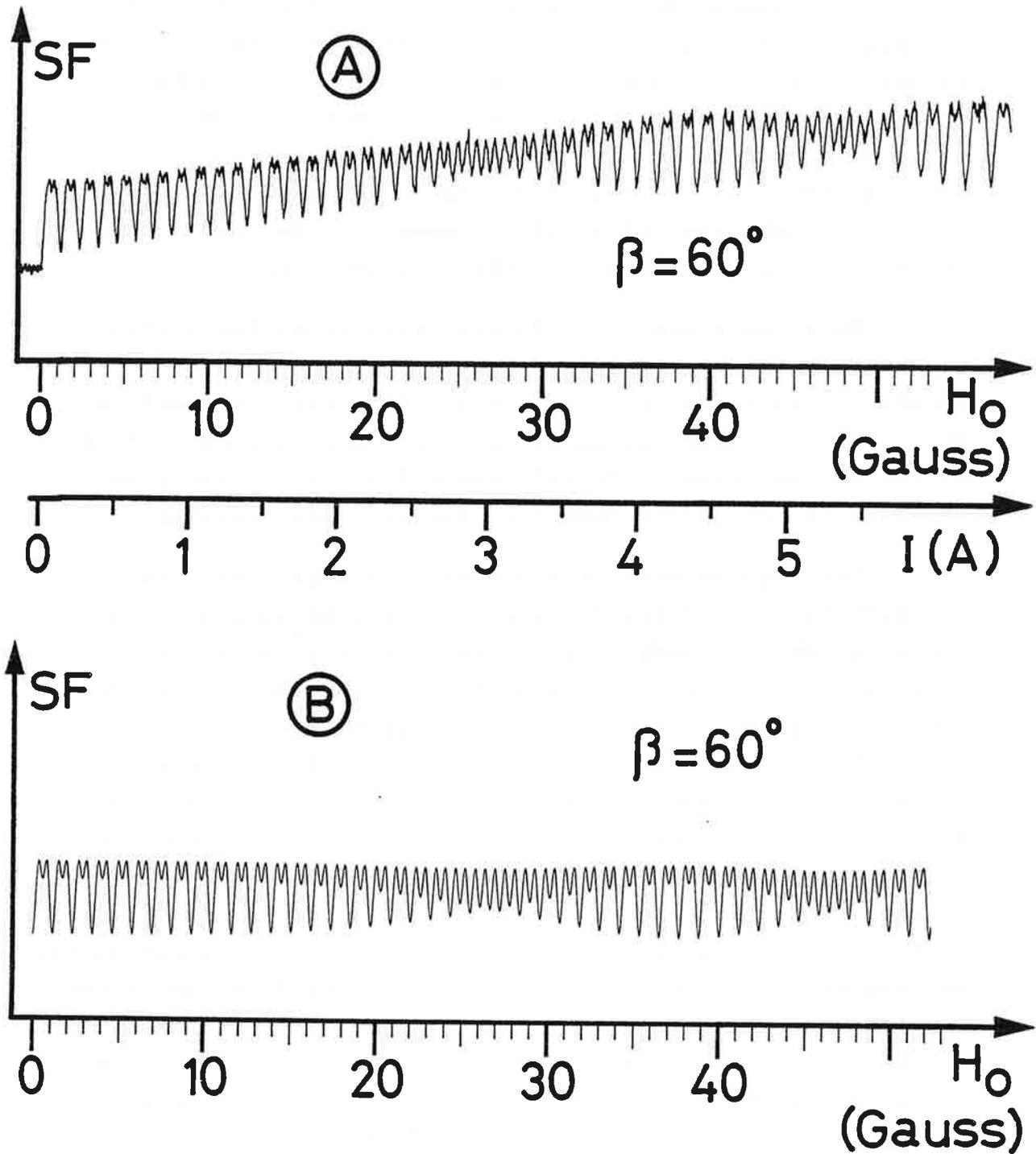


Figure 57

- a) Signal de fluorescence enregistré dans le cas de la transition hyperfine $F=1 \rightarrow F'=1$ pour $\beta = 60^\circ$.
- b) Signal de fluorescence correspondant calculé en fonction de H_0 .

La durée du vol des atomes à travers le champ magnétique a été ajustée de même en comparant les courbes théoriques et expérimentales. Le meilleur accord a été obtenu pour la valeur :

$$\tau = 1,2 \cdot 10^{-6} \text{ seconde}$$

très voisine de la valeur calculée en supposant que le champ a la même longueur que les bobines de Helmholtz ($\tau = 1,15 \cdot 10^{-6}$ seconde).

On voit ainsi que le modèle théorique très simple qui a été mis au point suffit à expliquer les caractéristiques les plus saillantes des signaux de fluorescence observés expérimentalement. Comme nous l'avons déjà signalé, ce résultat n'a pu être obtenu qu'en prenant en considération la non linéarité de l'effet Zeeman. Nous nous sommes contentés d'exposer ici les résultats des calculs obtenus avec un développement limité au deuxième ordre en H_0 , ce qui nous a permis de donner une expression analytique pour les différents signaux de fluorescence étudiés.

Il est cependant possible d'obtenir numériquement ces signaux en utilisant l'expression intégrale de la formule de Breit-Rabi pour calculer l'énergie des sous-niveaux Zeeman. Ce calcul numérique a été effectué pour certaines transitions ; les résultats obtenus permettent en particulier de rendre compte du brouillage des battements qui apparaît en champ magnétique fort sur certains enregistrements expérimentaux. Dans le cas de la transition $F=2 \rightarrow F'=1$, par exemple, les noeuds disparaissent dans les franges enregistrées à partir de 45 gauss, pour $\beta = 60^\circ$ et 90° ; ce qui n'apparaît pas dans les expressions analytiques données plus haut qui ont été utilisées pour le tracé des courbes théoriques de la figure 55.

Un autre aspect expérimental dont ne rend pas compte le modèle théorique que nous avons décrit est l'augmentation régulière du niveau moyen du signal de fluorescence à mesure que l'amplitude du champ croît. Ce phénomène s'explique aisément en observant le diagramme représentant la variation

de l'énergie des sous-niveaux Zeeman du fondamental lorsque l'atome est plongé dans un champ magnétique (figure 47). Lorsque l'amplitude du champ croît, les sous-niveaux s'écartent les uns des autres. La fréquence du laser excitateur, stabilisée sur la composante hyperfine en champ nul, va alors se trouver en désaccord croissant avec la transition excitée*. Le pompage optique hyperfin devient donc de moins en moins efficace ce qui explique l'augmentation globale du signal de fluorescence enregistrée au niveau de la zone de détection.

Cet effet est par ailleurs plus ou moins remarquable suivant les transitions étudiées et les conditions d'excitation. On peut noter par exemple qu'il est plus important pour la transition $F=2 \rightarrow F'=1$, excitée en polarisation π (figure 52), avec $\beta = 60^\circ$, que pour $F=1 \rightarrow F'=1$ dans les mêmes conditions (figure 57).

On pourra enfin remarquer que cet effet de "Zeeman-quenching" peut être utilisé pour étudier précisément le pompage optique qui se produit avant la détection de la fluorescence en spectroscopie colinéaire [55].

On pourra remarquer aussi sur les courbes expérimentales l'importance relative du signal de fluorescence correspondant à la première frange de Larmor par rapport au niveau de la fluorescence en champ rigoureusement nul. On peut l'expliquer par une redistribution sur tous les sous-niveaux du fondamental des atomes accumulés par le pompage optique Zeeman dans les niveaux pièges ($m_F=0$ pour $F=1 \rightarrow F'=1$ et $F=2 \rightarrow F'=2$ et $m_F=\pm 2$ pour $F=2 \rightarrow F'=1$). Cet effet est d'autant plus spectaculaire que l'alignement des moments magnétiques a produit un déséquilibre important entre les sous-niveaux Zeeman (le rapport des populations d'un sous-

* Ce désaccord n'est en fait pas identique pour toutes les transitions induites par la polarisation de la lumière entre sous-niveaux Zeeman du niveau fondamental et du niveau excité. La description complète du phénomène doit donc tenir compte simultanément des effets d'un champ magnétique appliqué sur une petite partie du jet atomique, ainsi que des effets du pompage optique auquel est soumis le jet sur toute sa longueur avant la région de détection de la fluorescence. Le problème devient alors trop complexe pour espérer le résoudre autrement que par une méthode de calcul numérique

niveau Zeeman "pompé" et d'un sous-niveau piège est de l'ordre de quelques 10^{-2} au niveau du photomultiplicateur).

En dépit de toutes ces remarques, on peut néanmoins estimer que le modèle théorique développé précédemment rend bien compte des aspects les plus importants présentés par le signal de fluorescence émis par les atomes après la traversée d'un champ magnétique statique.

5) Remarques

La périodicité des signaux de fluorescence observés peut être expliquée d'une autre façon en développant l'opérateur densité ρ sur la base des opérateurs tensoriels irréductibles T_q^k plutôt que sur la base $|F,m\rangle\langle F'm'|$ que nous avons utilisée [56,57].

Dans cette base, les seules composantes ρ_q^k non nulles à l'intérieur d'un niveau sont telles que k et q soient pairs, dans le cas où on observe une lumière de fluorescence polarisée linéairement σ . Elles représentent respectivement la population totale du niveau ($k=0$), l'alignement au moment quadrupolaire électrique ($k=2$) et le moment hexadécapolaire ($k=4$). Les composantes longitudinales ($q=0$) sont proportionnelles aux populations des sous-niveaux Zeeman, les composantes transversales ($q \neq 0$) correspondent à des combinaisons linéaires des cohérences Zeeman $\Delta m = q$ évoluant à la même fréquence.

Dans l'expérience décrite, on peut montrer que les éléments non diagonaux $\rho_{\mu\mu'}$, détectables dans le signal de fluorescence satisfont à la condition $|\mu-\mu'| \leq 4$ [53]. La cohérence Zeeman induite dans le fondamental et satisfaisant à la condition $|\mu-\mu'| = 4$ correspond alors dans la description tensorielle au moment hexadécapolaire macroscopique induit par la polarisation de la lumière. Ce moment hexadécapolaire est donc le moment le plus grand susceptible d'être détecté dans notre expérience.

Une condition nécessaire à son observation dans le signal de fluorescence est, néanmoins, que les contributions au signal des niveaux excités correspondant à des valeurs de m différentes ne s'annulent pas.

Dans le cas de la raie D_1 , les seuls termes qui contribuent au signal de fluorescence correspondent à des valeurs telles que $m=m'$ dans l'équation (9). Il n'est donc pas possible de détecter dans le signal de fluorescence des cohérences Zeeman pour lesquelles $|\mu-\mu'|$ soit supérieur à 2.

L'harmonique ω_0 correspond à des cohérences Zeeman telles que $|\mu-\mu'| = +1$ tandis que $|\mu-\mu'| = +2$ correspond à l'harmonique $2\omega_0$. Aucune harmonique d'ordre supérieur n'a été observée dans la raie D_1 .

Lorsque l'angle β vaut 90° (lumière polarisée rectilignement σ), les seules cohérences induites correspondent à $|\mu-\mu'| = +2$; quand β est petit, ce sont les cohérences telles que $|\mu-\mu'| = +1$ qui sont prépondérantes.

En revanche, des cohérences correspondant à $2 < |\mu-\mu'| \leq 4$ peuvent être observées dans la raie D_2 . Nous avons ainsi vérifié, dans un calcul que nous ne reproduisons pas ici, qu'il existe une harmonique à $4\omega_0$ dans le signal de fluorescence pour la composante hyperfine $F=2 \rightarrow F'=1$ de la raie D_2 .

6) Conclusion

L'échelle horizontale des courbes expérimentales a été ajustée de façon à obtenir le meilleur accord entre théorie et expérience.

Le fait que les paramètres ajustés $\frac{H_0}{I} = 8,93$ gauss/Ampère et $\tau = 1,2 \cdot 10^{-6}$ seconde soient très voisins des estimations a priori des mêmes paramètres ($\frac{H_0}{I} = 10$ gauss/Ampère

et $\tau = 1,15 \cdot 10^{-6}$ seconde) montre que notre méthode est utilisable pour déterminer a priori un spin nucléaire I. De plus, les paramètres de l'expérience ayant été déterminés avec un isotope de spin connu, par exemple un isotope stable, la détermination du spin d'un autre isotope, inconnu celui-là, se fera en utilisant les mêmes valeurs des paramètres et se ramènera donc à une mesure relative annulant ainsi les incertitudes dues à une connaissance imparfaite des paramètres expérimentaux τ et H_0/I .

Nous avons de plus vérifié que le pointé de la position des noeuds des battements observés permet de déterminer approximativement la largeur de la structure hyperfine du fondamental de l'atome de ^{23}Na (valeur exacte $\Delta\nu_{\text{HFS}} = 1772$ MHz, valeur moyenne estimée après 3 pointés de noeuds : $\Delta\nu_{\text{HFS}} = 1764$ MHz).

E. EXPERIENCE DE RESONANCE MAGNETIQUE NUCLEAIRE

La deuxième expérience que nous allons décrire dans ce paragraphe est une expérience de résonance magnétique classique réalisée en présence d'un champ statique et d'un champ radiofréquence. Son originalité tient donc moins à la nouveauté de la méthode mise en oeuvre qu'à son adaptation à la technique de spectroscopie colinéaire. Le principe de la méthode de résonance magnétique est bien connu : il sera rappelé très brièvement. En revanche, l'accent sera mis sur la description aussi bien théorique qu'expérimentale dans profils de raies de résonance magnétique observés en champ radiofréquence fort grâce, une fois encore, au caractère monocinétique du jet atomique rapide.

1) Rappel du principe de la méthode

Lorsque le laser est accordé sur l'une des composantes hyperfines de la raie D_1 , la polarisation de la lumière induit un pompage Zeeman qui modifie la répartition des populations atomiques entre les différents sous-niveaux (F, m_F)

du fondamental. La dégénérescence entre ces sous-niveaux est levée par un champ magnétique statique, d'amplitude néanmoins assez faible pour que la lumière excitatrice continue à induire toutes les transitions $|F, m_F\rangle \rightarrow |F', m_{F'}\rangle$ permises.

Pour les atomes de Sodium étudiés, la largeur de la structure hyperfine $\Delta\nu_{\text{HFS}}$ est d'environ 1772 MHz. La fréquence de Larmor électronique étant de 1,4 MHz/gauss, on est autorisé, lorsqu'on applique des champs H_0 de quelques gauss, à traiter l'interaction Zeeman avec le champ H_0 comme une perturbation en premier ordre en H_0 . On obtient alors l'expression suivante pour l'énergie des sous-niveaux Zeeman du fondamental :

$$E_Z = g_F \mu_0 m_F H_0$$

Comme : $g_F \approx g_J \frac{F(F+1) + J(J+1) - I(I+1)}{2F(F+1)}$ et $g_J \approx 2$ pour le fondamental ($J = \frac{1}{2}$), on obtient :

$$E_Z(I \pm \frac{1}{2}, m_F) \approx \pm \frac{2\mu_0 H_0}{2I+1} m_F$$

En champ faible les sous-niveaux sont donc sensiblement équidistants. Si l'on applique un champ radiofréquence perpendiculaire au champ statique H_0 et si la fréquence r.f. est égale à la fréquence de transition entre deux niveaux Zeeman adjacents, le champ r.f. a pour effet d'égaliser les populations des sous-niveaux magnétiques ; le signal de fluorescence détecté s'en trouve alors modifié. La fréquence de transition entre deux sous-niveaux adjacents, en champ faible est :

$$\nu_{\text{r.f.}} = \frac{2\mu_0 H_0}{h(2I+1)}$$

Pour une fréquence $\nu_{\text{r.f.}}$ fixe donnée, il existe donc pour chaque valeur possible de I , une valeur de H_0 pour laquelle le signal de fluorescence doit augmenter :

$$H_0 = \frac{(2I+1)h\nu_{\text{r.f.}}}{2\mu_0}$$

C'est cette valeur de H_0 qui est déterminée expérimentalement et qui permet de choisir entre les différentes valeurs possibles de I .

2) Procédure expérimentale et signaux observés

Le dispositif expérimental a déjà été décrit au paragraphe C (figure 48).

Le champ statique H_0 est encore produit par la paire de bobines de Helmholtz déjà décrite. Le champ oscillant, perpendiculaire à H_0 , et axé sur le jet atomique est établi sur une longueur de 10 cm, de part et d'autre du centre des bobines, dans la partie la plus homogène du champ statique (figure 49). Le champ terrestre est compensé comme dans les expériences précédentes sur toute la longueur de la zone d'interaction laser-jet rapide.

Pour améliorer la détection des résonances magnétiques, le champ radiofréquence a été modulé, et une détection en phase des résonances magnétiques a été utilisée.

La lumière laser est polarisée rectilignement et la direction du champ statique H_0 ajustée de manière à la rendre parallèle à la direction de polarisation de la lumière (polarisation π).

La procédure expérimentale utilisée pour ce réglage est dérivée des résultats de l'expérience en champ statique décrite au paragraphe E. En effet, lorsque le champ H_0 et la polarisation de la lumière sont parallèles ($\beta=0$), le signal de fluorescence ne présente aucune modulation. Dans une première étape, la fréquence du laser est accordée sur la transition hyperfine désirée, tous champs nuls, avec une puissance lumineuse convenable (voir paragraphe D.2) ; puis, avec le champ r.f. toujours nul, la direction du champ H_0 est ajustée de façon qu'un balayage de son amplitude ne produise aucun signal de franges sur la lumière de fluorescence

détectée. La précision du réglage de l'angle β est de l'ordre de quelques degrés. Enfin, on applique le champ r.f. et on balaye de nouveau l'amplitude statique H_0 , en présence du champ r.f. cette fois.

Dans la partie gauche de la figure 58, nous avons reproduits les enregistrements expérimentaux qui ont été obtenus pour la transition hyperfine $3^2S_{1/2}, F=1 \rightarrow 3^2P_{1/2}, F'=1$. Ces courbes ont été obtenues en maintenant la puissance et la fréquence délivrées par le générateur r.f. fixes, et en faisant varier linéairement le courant circulant dans les bobines de Helmholtz jusqu'à l'observation d'une résonance dans le signal de fluorescence. Cette résonance se produit lorsque les atomes accumulés par le pompage Zeeman dans le sous-niveau $F=1, m_F=0$ du fondamental sont redistribués sur les autres sous-niveaux magnétiques $F=1, m_F=\pm 1$. (Le champ r.f. étant perpendiculaire au champ statique, seules les transitions π -magnétiques, $\Delta m_F = \pm 1$ sont permises). Le nombre d'atomes excités par la lumière augmente alors et on enregistre une résonance positive.

Les courbes expérimentales ont été enregistrées en fonction du courant I dans les bobines. L'étalonnage en champ magnétique des courbes enregistrées n'a pas été réalisé en fonction d'une valeur moyenne du champ magnétique, comme dans l'expérience en champ statique seul, mais en fonction de la valeur de H_0 au centre des bobines de Helmholtz. Une mesure directe nous a fait estimer $\frac{H_0}{I}$ égal à 10 gauss par Ampère et nous avons vérifié par ailleurs son homogénéité sur toute la longueur du solénoïde qui crée le champ r.f. (voir figure 49, chapitre VI.C).

Les enregistrements présentés ont été obtenus pour une fréquence r.f. $\omega_0/2\pi = 7$ MHz et des puissances croissantes du champ oscillant. A mesure que la puissance r.f. augmente, des oscillations apparaissent de part et d'autre du centre de la résonance principale (figure 58.b). Lorsque celle-ci a atteint son amplitude maximale, les pics secon-

daires s'élèvent rapidement pendant que la résonance principale se dédouble (figure 58.c et d). Ce comportement en champ r.f. intense est tout à fait différent du comportement des résonances magnétiques habituellement observées sur les jets thermiques pour lesquels l'élévation de la puissance r.f. se traduit uniquement par un élargissement des raies.

3) Courbes théoriques de résonance magnétique

Les courbes théoriques de résonance magnétique ont été calculées pour différentes valeurs de la puissance r.f. et comparées aux courbes expérimentales.

Les probabilités de transition d'un système atomique d'un état décrit par un nombre quantique magnétique m à un autre état peuvent être calculées à partir de la formule de Majorana pour n'importe quelle valeur de m [8]. Dans le cas de la transition $F=1 \rightarrow F'=1$ on en déduit que la probabilité de transition $P_{0,\pm 1}$ d'un moment magnétique pour passer d'un état magnétique initial $m_F=0$ à un état final $m_F=\pm 1$ est :

$$P_{0,\pm 1} = 4 \left(\frac{\omega_o \cdot H_{r.f.}}{a \cdot H_o} \right)^2 \sin^2 \frac{2a\tau'}{2} \left\{ 1 - \left(\frac{\omega_o \cdot H_{r.f.}}{a \cdot H_o} \right)^2 \sin^2 \frac{2a\tau'}{2} \right\}$$

$$\text{avec } a = \left\{ (\omega_o - \omega)^2 + \left(\omega_o \frac{H_{r.f.}}{H_o} \right)^2 \right\}^{1/2}$$

Dans cette relation, $\frac{\omega_o}{2\pi}$ est la fréquence de Larmor de l'état fondamental ($\frac{\omega_o}{2\pi} = 0,7$ MHz/gauss), $H_{r.f.}$ et $\frac{\omega}{2\pi}$ l'amplitude et la fréquence du champ magnétique oscillant. τ' est le temps d'interaction des moments magnétiques avec le champ radio-fréquence ($\tau' = 0,5$ microseconde).

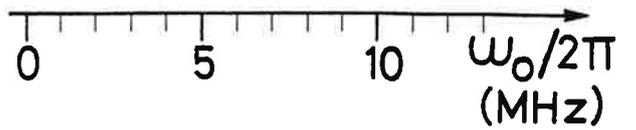
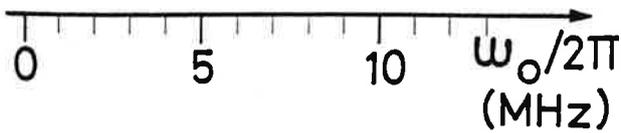
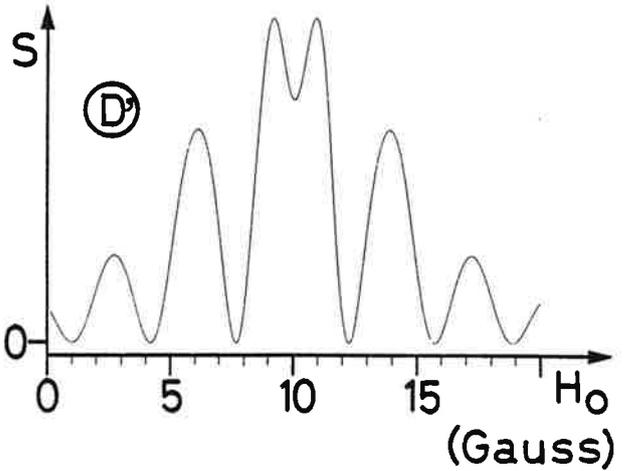
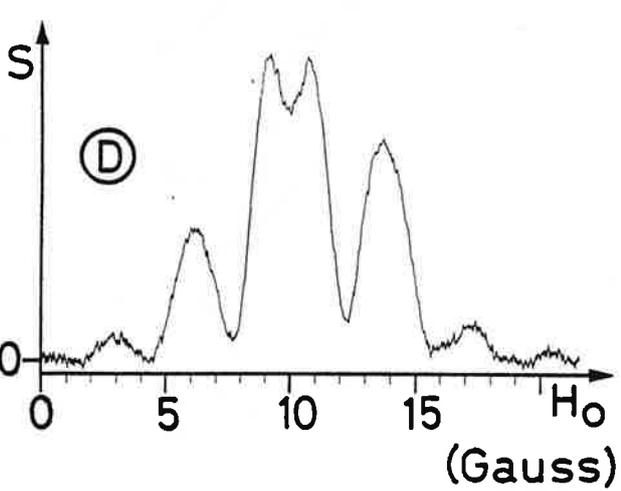
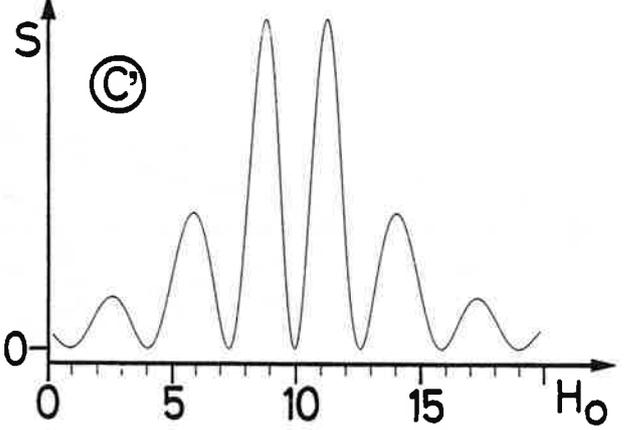
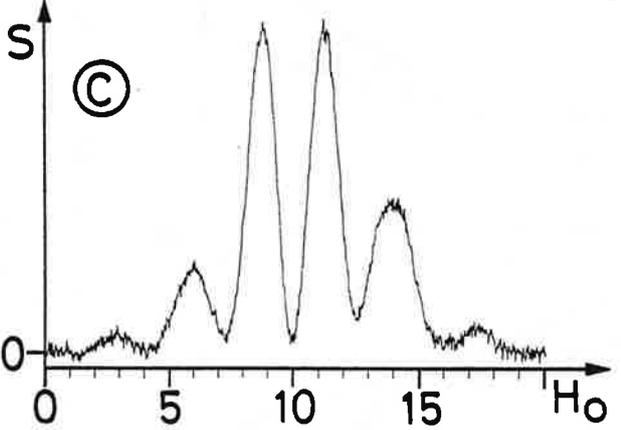
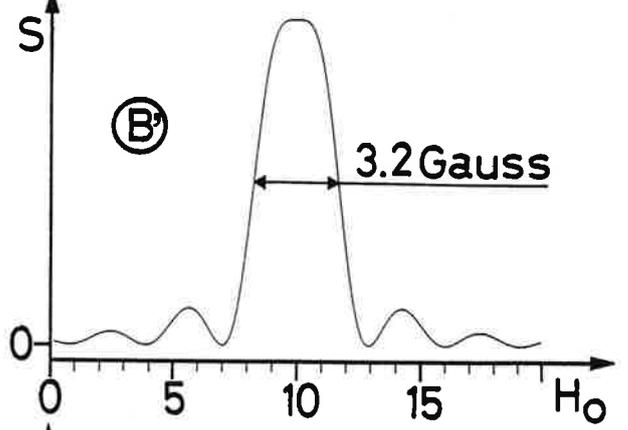
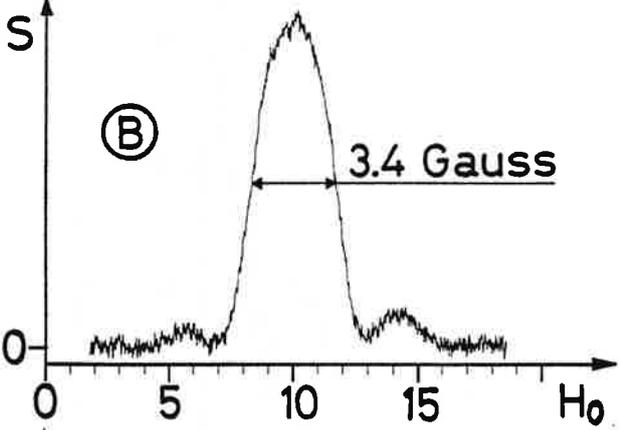
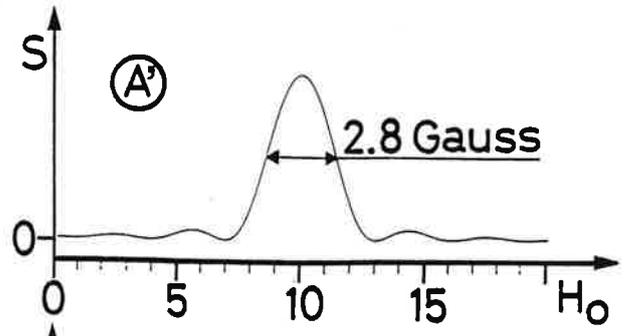
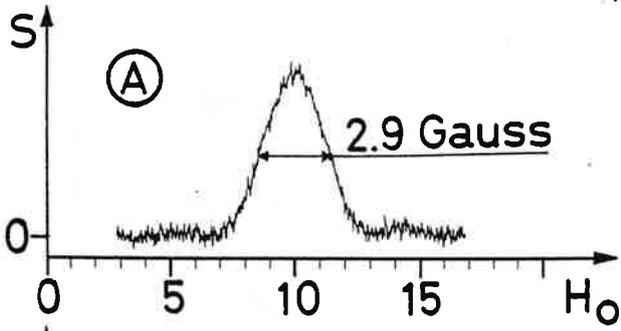
Les profils de raies théoriques ont été représentés sur la partie droite de la figure 58. Les largeurs des raies théoriques et expérimentales sont en bon accord aussi bien

Figure 58

Enregistrements expérimentaux A, B, C, D (partie gauche de la figure) et courbes théoriques correspondantes A', B', C', D' (partie droite de la figure) représentant le signal de résonance magnétique obtenu à puissance r.f. croissante avec le laser accordé sur la transition hyperfine $F=1 \rightarrow F'=1$. La fréquence r.f. est $\frac{\Omega}{2\pi} = 7$ MHz. La puissance r.f. utilisée est successivement :

$$A : P_0/4 ; B : P_0 ; C : 4P_0 ; D : 7P_0$$

où P_0 est la puissance optimum.



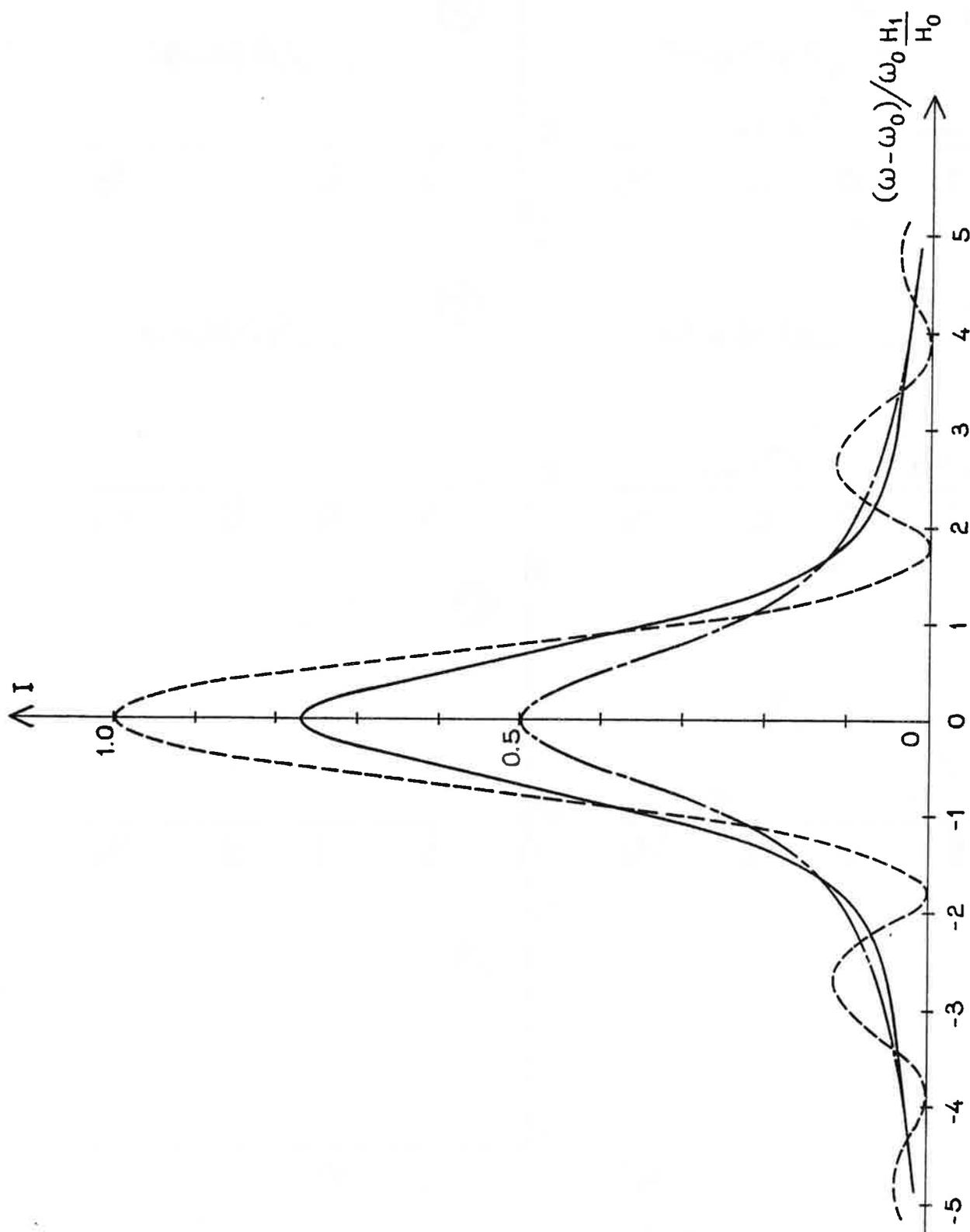


Figure 59 (d'après [8] et [58]) : Probabilités de transition dans le cas d'une expérience de résonance magnétique :

- la courbe en tirets représente $P_{1/2 \rightarrow 1/2}$
- la courbe en traits pleins correspond à $\langle P_{1/2 \rightarrow -1/2} \rangle$ quand $\omega_0(H_1/H_0)t = 1, 2\pi$.
Pour cette valeur la probabilité de transition à résonance est maximum.
- la courbe en traits de longueurs inégales représente $\langle P_{1/2 \rightarrow -1/2} \rangle$ quand $\omega_0(H_1/H_0)t \gg \pi$.

pour des puissances r.f. faibles (figure 58.a) que pour la puissance r.f. optimum pour laquelle la raie atteint son amplitude maximale ($P_{0\pm 1} = 1$ à la résonance). C'est l'indication que le temps d'interaction $\tau' = 0,5$ microseconde des atomes à l'intérieur du champ oscillant a été correctement évalué.

Pour des valeurs du champ $H_{r.f.}$ supérieures à la valeur optimum, des oscillations avec des amplitudes décroissantes apparaissent ainsi dans les résonances théoriques, qui décrivent bien celles qui ont été observés expérimentalement pour des puissances r.f. comparables.

La formule de Majorana telle qu'elle a été écrite a été établie pour une seule classe de vitesse, donc en supposant que tous les atomes qui interagissent avec le champ r.f. ont la même vitesse. L'accord entre les courbes tracées d'après cette formule et les courbes expérimentales prouve bien l'homogénéité des vitesses atomiques à l'intérieur d'un jet atomique rapide. Dans un jet thermique, en revanche, les oscillations sont moyennées par la distribution des vitesses des atomes et rapidement brouillées. Le comportement théorique des profils de raies dans le cas d'une large distribution des vitesses est illustré par les courbes représentées en figure 59, qui sont tirées de [58]. Ces courbes montrent effectivement le tassement de la courbe de résonance et son élargissement quand la distribution des vitesses est prise en compte.

4) Largeur de raies et mesure de spin

La largeur à mi-hauteur des raies de résonance est de l'ordre de :

$$\Delta H_0 \approx 3,2 \text{ gauss}$$

correspondant à une largeur en fréquence : $\Delta \nu = \frac{2\nu_0 \Delta H_0}{h(2I+1)} \approx 2,24 \text{ MHz.}$

Ayant estimé que le champ r.f. agit sur le jet pendant un intervalle de temps de 0,5 microseconde, on s'attend à une lar-

geur en fréquence γ telle que $\gamma \cdot \Delta\nu \approx 1$ donc $\gamma = 2$ MHz. Ceci correspond à peu près à la largeur expérimentale.

A partir de cette remarque sur la largeur en fréquence des résonances, observée pour une fréquence r.f. de 7 MHz, on peut conclure qu'il est possible de déterminer à partir de cette expérience des valeurs de spins allant jusqu'à 7 puisque l'on sait a priori que I est entier (isotopes pairs) ou demi-entiers (isotopes impairs). Pour mesurer des spins de valeur supérieure, il suffit d'augmenter la fréquence du champ radiofréquence.

F. CONCLUSION

Pour déduire les propriétés nucléaires des grandeurs mesurées dans une expérience de spectroscopie, il est nécessaire de connaître la valeur du spin nucléaire I. Il était donc important de montrer que celui-ci pouvait être mesuré dans une expérience de spectroscopie colinéaire sur jet rapide. Les expériences que nous venons de décrire conduisent toutes deux à une mesure directe du spin. Ces méthodes ont été mises au point sur un jet rapide de Sodium stable ; elles doivent trouver leur application future dans l'étude "en ligne" de longues chaînes d'isotopes radioactifs, chaque fois que la détermination de I par les méthodes traditionnelles mène à un résultat incertain.

Le cas des atomes diamagnétiques requiert une attention particulière. En effet, pour ces atomes, le moment magnétique électronique est nul ($J=0$ dans l'état fondamental) et le moment total est de l'ordre du magnéton nucléaire μ_n plutôt que de μ_o ($\frac{\mu_n}{\mu_o} = \frac{m_p}{m_c} \sim 5.10^{-4}$).

Dans ce cas, il est nécessaire de disposer d'un champ statique intense (2000 fois plus grand environ) pour pouvoir mettre en oeuvre les deux méthodes ; toutefois, la méthode de résonance magnétique classique exige aussi un champ radio-

fréquence plus intense. La méthode n'utilisant qu'un champ statique nul doit par conséquent être préférée dans ce cas là.

D'autre part, toujours dans le cas des atomes diamagnétiques, les spins nucléaires sont déjà connus ou bien peuvent être déterminés sans ambiguïté par d'autres méthodes [48]. Les méthodes que nous venons de mettre au point et qui sont des mesures directes du facteur de Landé g_I , trouvent leur intérêt dans la détermination du moment magnétique nucléaire μ_I (I étant connu). Dans le cas des isotopes du Radium en particulier, aucun moment magnétique n'est connu jusqu'à présent, alors que les structures hyperfines du niveau $6s6p^1P_1$ ont été mesurées pour plusieurs isotopes. La détermination par notre méthode du moment magnétique nucléaire d'un isotope abondant fournirait le maillon qui manque pour passer des structures hyperfines aux moments magnétiques nucléaires pour toute la série isotopique.

En dehors de ces applications nucléaires, la méthode mettant en oeuvre le champ statique seul peut être utilisée, d'une manière générale, pour détecter des changements de phase dans les états atomiques, qui se produiraient le long du jet atomique. Une application envisageable pourrait être, par exemple, l'étude des collisions avec changement de phase dans les jets atomiques.

Appendice I

Matrices de rotation d'un angle β , autour de l'axe Oy , dans la base des états propres autour de l'axe Oz .

F=2

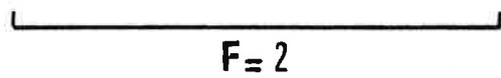
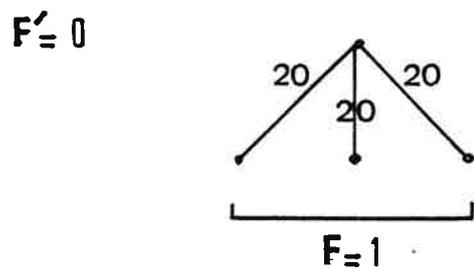
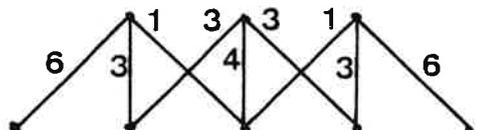
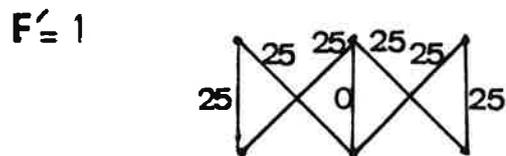
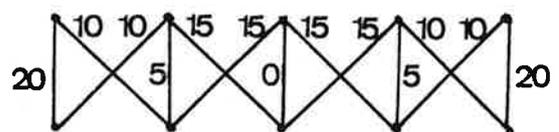
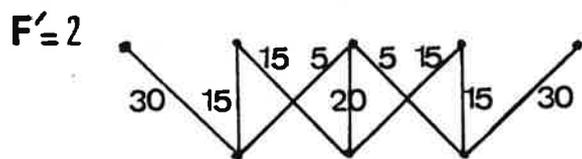
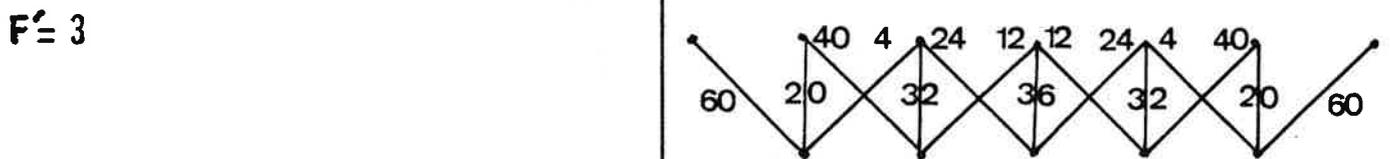
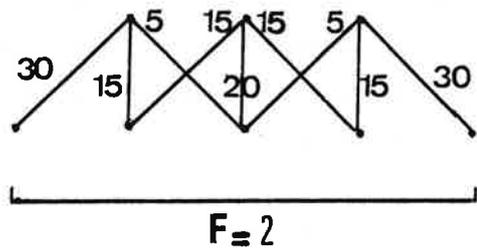
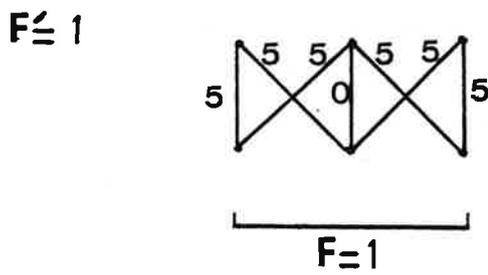
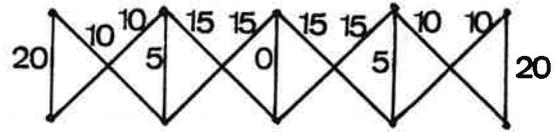
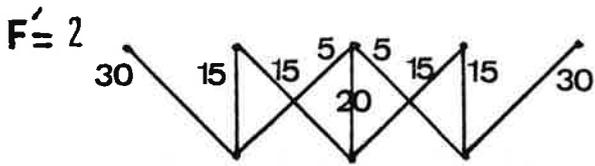
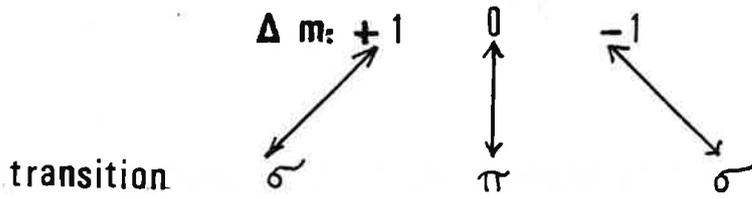
m	1	0	-1
m'			
1	$\frac{1}{2} (1 + \cos \beta)$	$\frac{1}{\sqrt{2}} \sin \beta$	$\frac{1}{2} (1 - \cos \beta)$
0	$-\frac{1}{\sqrt{2}} \sin \beta$	$\cos \beta$	$\frac{1}{\sqrt{2}} \sin \beta$
-1	$\frac{1}{2} (1 - \cos \beta)$	$-\frac{1}{\sqrt{2}} \sin \beta$	$\frac{1}{2} (1 + \cos \beta)$

$\mathbb{F}=2$

m'	m	2	1	0	-1	-2
2		$\cos^4 \frac{\beta}{2}$	$\cos^2 \frac{\beta}{2} \cdot \sin \beta$	$\frac{\sqrt{6}}{4} \sin^2 \beta$	$\sin^2 \frac{\beta}{2} \cdot \sin \beta$	$\sin^4 \frac{\beta}{2}$
1		$-\cos^2 \frac{\beta}{2} \cdot \sin \beta$	$\cos^4 \frac{\beta}{2} - \frac{3}{4} \sin^2 \beta$	$\frac{\sqrt{6}}{2} \cos \beta \cdot \sin \beta$	$\frac{3}{4} \sin^2 \beta - \sin^4 \frac{\beta}{2}$	$\sin^2 \frac{\beta}{2} \cdot \sin \beta$
0		$\frac{\sqrt{6}}{4} \sin^2 \beta$	$-\frac{\sqrt{6}}{2} \cos \beta \cdot \sin \beta$	$\cos^2 \beta - \frac{\sin^2 \beta}{2}$	$\frac{\sqrt{6}}{2} \cos \beta \cdot \sin \beta$	$\frac{\sqrt{6}}{4} \sin^2 \beta$
-1		$-\sin^2 \frac{\beta}{2} \sin \beta$	$\frac{3}{4} \sin^2 \beta - \sin^4 \frac{\beta}{2}$	$-\frac{\sqrt{6}}{2} \cos \beta \sin \beta$	$\cos^4 \frac{\beta}{2} - \frac{3}{4} \sin^2 \beta$	$\cos^2 \frac{\beta}{2} \cdot \sin \beta$
-2		$\sin^4 \frac{\beta}{2}$	$-\sin^2 \frac{\beta}{2} \cdot \sin \beta$	$\frac{\sqrt{6}}{4} \sin^2 \beta$	$-\cos^2 \frac{\beta}{2} \cdot \sin \beta$	$\cos^4 \frac{\beta}{2}$

Appendice II

Probabilités de transition pour les différentes composantes hyperfines de la raie D_1 et de la raie D_2 (pour $I=3/2$).



APPENDICE III : CALCUL DES SIGNAUX DE FLUORESCENCE EN CHAMP
MAGNETIQUE STATIQUE (FRANGES DE LARMOR)

1. TRANSITION F=1 → F'=1

a) On considère d'abord une excitation laser en polarisation π , l'angle β est l'angle entre l'axe de quantification (direction de la polarisation de la lumière, cf. figure 54, chapitre VI) et le champ statique. Le signal de fluorescence à la sortie du champ, en fonction des populations des sous-niveaux Zeeman du fondamental, est donné par $S(\tau)$:

$$S(\tau) = 5 \rho_{11}(\tau) + 5 \rho_{-1-1}(\tau)$$

On pose : $\Delta\rho = \rho_{00} - \rho_{11}$. On a alors :

$$S(\tau) = 5\Delta\rho \sin^2\beta \left\{ 2\cos^2\beta \left[1 - \cos(\omega_0 \cdot \tau) \cdot \cos(\Delta\omega_0 \cdot \tau) \right] + \frac{\sin^2\beta}{2} \left[1 - \cos(2\omega_0 \cdot \tau) \right] \right\}$$

Le terme oscillant à la fréquence ω_0 est maximum pour $\beta = \pi/4$ et il est nul quand $\beta = 0$ et $\pi/2$. Le terme oscillant à la fréquence $2\omega_0$ est nul pour $\beta = 0$ et maximum pour $\beta = \pi/2$. La modulation à la fréquence $2\omega_0$ fait apparaître un creux au sommet de chaque frange de fréquence ω_0 lorsque β est strictement supérieur à 45° .

b) Lorsque le faisceau excitateur est polarisé σ^+ , le signal de fluorescence détecté, en fonction des populations du niveau fondamental, est donné par :

$$S(\tau) = 5\rho_{00} + 5\rho_{-1-1} = \frac{5}{2}\Delta\rho \left\{ 1 - \cos(\omega_0 \cdot \tau) \cdot \cos(\Delta\omega_0 \cdot \tau) + \frac{1}{4}(1 - \cos(2\omega_0 \cdot \tau)) \right\}$$

(ce calcul a été effectué pour un angle $\beta = \pi/2$).

2. TRANSITION F=2 → F'=2

Les observations du signal de fluorescence ont été effectuées pour un angle β égal à $\pi/2$, en excitation π et σ^+ .

a) En excitation π , le calcul donne, pour la partie oscillante du signal :

$$S(\tau) = 20(\rho_{22} + \rho_{-2-2}) + 5(\rho_{11} + \rho_{-1-1}) \\ = \frac{15}{2} \cos(2\omega_0 \cdot \tau) \left\{ \cos(4\Delta\omega_0 \cdot \tau) \cdot (\Delta\rho_0 - \Delta\rho_2) - \Delta\rho_2 \right\}$$

$$\text{avec } \Delta\rho_2 = \rho_{22} - \rho_{11} \quad \text{et} \quad \Delta\rho_0 = \rho_{00} - \rho_{11}$$

Dans le cas d'une puissance lumineuse intense, on a :

$$\rho_{22} = \rho_{11} = 0 \quad \text{et} \quad \Delta\rho_2 = 0, \quad \text{et} :$$

$$S(\tau) = -\frac{15}{2} \cos(2\omega_0 \cdot \tau) \cdot \cos(4\Delta\omega_0 \cdot \tau) \rho_{00}.$$

Si la puissance du laser est faible, on peut montrer que :

$$\Delta\rho_2 = -3\Delta\rho_0 \quad \text{et}$$

$$S(\tau) \approx \frac{15}{2} \Delta\rho_0 \cdot \cos(2\omega_0 \cdot \tau) \left\{ 4\cos(4\Delta\omega_0 \cdot \tau) + 3 \right\}$$

b) En excitation σ^+ , toujours pour $\beta = \pi/2$, on obtient :

$$S(\tau) = 10\rho_{-2-2} + 15\rho_{-1-1} + 15\rho_{00} + 10\rho_{11}$$

En posant : $\Delta\rho_i = \rho_{ii} - \rho_{-2-2}$, on a

$$S(\tau) = -\frac{5}{2} \cos(\omega_0 \cdot \tau) \cdot \cos(\Delta\omega_0 \cdot \tau) \left\{ \cos^2(\Delta\omega_0 \cdot \tau) \left[2\Delta\rho_2 + 4\Delta\rho_1 - 4\Delta\rho_{-1} \right] \right. \\ \left. - 3(\Delta\rho_1 - \Delta\rho_{-1}) \right\} - \frac{15}{8} \cos(2\omega_0 \cdot \tau) \left\{ \cos(4\Delta\omega_0 \cdot \tau) \left[\Delta\rho_2 - 2\Delta\rho_0 \right] \right. \\ \left. + \Delta\rho_2 - \Delta\rho_1 - \Delta\rho_{-1} \right\}$$

A forte puissance $\Delta\rho_{-1} = \Delta\rho_0 = \Delta\rho_1 = 0$:

$$S(\tau) \sim -5\Delta\rho_2 \left\{ \cos(\omega_0 \cdot \tau) \cdot \cos^3(\Delta\omega_0 \cdot \tau) + \frac{3}{4} \cos(2\omega_0 \cdot \tau) \cdot \cos^2(2\Delta\omega_0 \cdot \tau) \right\}$$

A faible puissance, on peut mettre le signal sous la forme :

$$S(\tau) = -\frac{5}{2}\Delta\rho_1 \left\{ 17\cos(\omega_0 \cdot \tau) \cdot \cos(\Delta\omega_0 \cdot \tau) \left[\frac{2}{3}\cos^2(\Delta\omega_0 \cdot \tau) - \frac{1}{4} \right] \right. \\ \left. + \frac{9}{4}\cos(2\omega_0 \cdot \tau) \left[\cos(4\Delta\omega_0 \cdot \tau) + \frac{3}{4} \right] \right\}$$

La transition $F=1 \rightarrow F'=2$ ne donnant pas lieu à un pompage optique Zeeman, l'alignement des moments magnétiques dans le fondamental est trop faible pour être observé. Nous n'avons donc pas cherché à étudier théoriquement les signaux de fluorescence correspondant à cette transition.

Chapitre VII

DETECTION DES RESONANCES OPTIQUES PAR
IONISATION DANS UN CHAMP ELECTRIQUEA. INTRODUCTION

Les méthodes de détection des résonances optiques exposées jusqu'ici font toutes appel à la détection de la fluorescence. Les méthodes de détection non optique présentent dans certains cas spécifiques des avantages de sensibilité importants par rapport aux méthodes optiques. Dans la partie III de cet exposé, on décrit en particulier une méthode de détection par déflexion dans un champ magnétique, dont le principe est dû à Rabi ; cette méthode s'est révélée extrêmement sensible pour l'étude des atomes alcalins radioactifs produits en jets thermiques.

Les méthodes de détection optique sur jets atomiques rapides qui ont été exposées précédemment nécessitent, pour être très sensibles, de collecter la lumière de fluorescence sur une grande longueur de jet [47]. On se trouve alors confronté à de sérieux problèmes techniques pour éliminer la lumière parasite provenant de la diffusion de la lumière laser incidente. Il semblait donc intéressant de comparer les performances de ces méthodes à celles d'un procédé de détection qui ne ferait plus appel à l'observation du signal de fluorescence. Dans l'expérience qui va être décrite, les atomes excités ne sont plus détectés par l'intermédiaire des photons qu'ils réémettent en retournant dans leur état fondamental. Une excitation lumineuse supplémentaire les porte dans un état de Rydberg de nombre quantique principal n relativement peu élevé. On tire alors profit du fait que, pour un atome dans un état de Rydberg, l'électron de valence n'est que faiblement lié à l'atome et un champ électrique extérieur raisonnable suffit pour libérer cet électron de valence et ioniser l'atome étudié. On est alors ramené au problème bien maîtrisé de la détection de particules chargées. Cette méthode de détection a été en effet utilisée dans de multiples expériences sur les états de Rydberg [59]. Elle présente de grands avantages de simplicité de mise en oeuvre et de sensibilité.

C'est une expérience mettant en oeuvre ce procédé de détection des résonances optiques par ionisation dans un champ électrique statique qui va être décrite à présent. Sa sensibilité sera comparée à la sensibilité maximale atteinte par le procédé de détection de la fluorescence.

B. PRINCIPE DE L'EXPERIENCE

Le schéma de principe de l'expérience de détection des résonances optiques par excitation dans un état de Rydberg puis ionisation de l'atome excité est représenté en figure 60.

On se propose d'effectuer des mesures spectroscopiques sur la transition $A \leftrightarrow B$. Pour cela, on éclaire les atomes d'un jet atomique par le rayonnement monochromatique d'un laser accordable de fréquence ν_1 identique à ceux qui ont été utilisés dans les autres expériences qui ont déjà été décrites. Ce laser induit la transition $A \leftrightarrow B$. Le rayonnement issu d'un autre laser de fréquence ν_2 transfère l'atome du niveau B au niveau de Rydberg C. L'application d'un champ électrique statique, après cette deuxième excitation, permet d'ioniser les atomes à partir du niveau de Rydberg.

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

La transition $A \leftrightarrow B$ devant être étudiée à haute résolution, l'excitation induite par le rayonnement du premier laser doit être sélective en fréquence. En revanche, le laser de fréquence ν_2 qui excite les atomes du niveau B vers le niveau de Rydberg doit rester accordé sur la transition $B \rightarrow C$ pendant que le premier laser explore la structure hyperfine de la raie $A \leftrightarrow B$. D'autre part, on doit pouvoir étudier la transition $A \leftrightarrow B$ pour plusieurs isotopes du même élément sans modifier la fréquence du laser accordé sur la transition $B \leftrightarrow C$. Cette dernière excitation doit

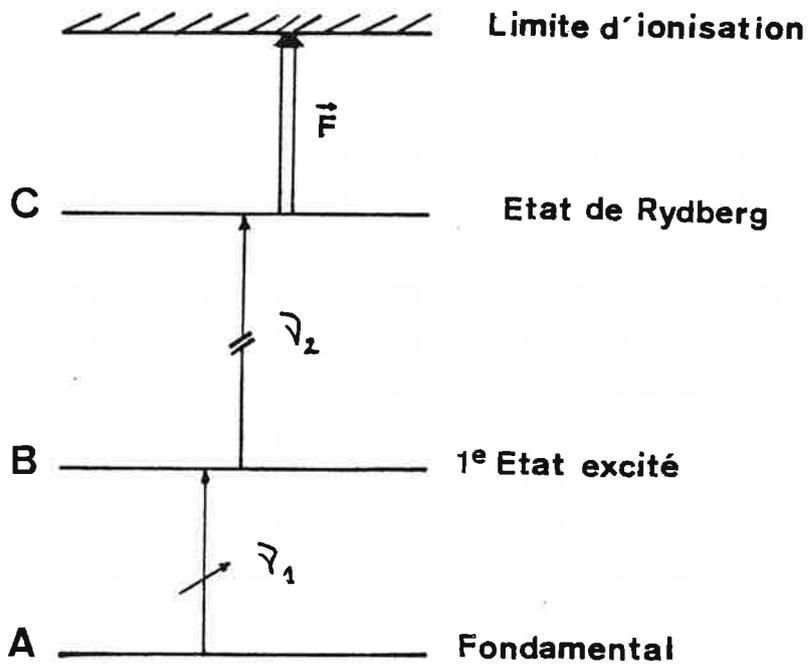


Figure 60

Schéma de principe de la détection des résonances optiques par excitation lumineuse à deux étages ($\nu_1 + \nu_2$) dans un état de Rydberg, puis ionisation par application d'un champ électrique statique (\vec{F}).

donc être non sélective entre les différents isotopes. Pour cela, le rayonnement du laser de fréquence ν_2 doit avoir un spectre assez large pour couvrir la structure du niveau B des différents isotopes.

Le laser qui réalise le premier étage de l'excitation doit être colinéaire au jet rapide pour éviter un élargissement Döppler important. Pour le deuxième laser, par contre, dont la fréquence reste bien fixe, il est préférable qu'il voit une largeur Döppler du jet atomique comparable à sa largeur spectrale. Il ne doit donc pas être colinéaire au jet atomique. D'autre part, comme les sections efficaces d'excitation vers le niveau de Rydberg sont faibles, l'intensité du faisceau de fréquence ν_2 doit être assez intense pour exciter une proportion non négligeable des atomes portés dans l'état B.

Il n'y a production d'ions que si le premier laser est accordé sur la transition $A \leftrightarrow B$. Les ions ainsi formés sont facilement séparés des atomes neutres. La mesure du courant d'ions ou leur comptage à l'aide d'un multiplicateur d'électrons permet alors d'enregistrer la structure de la raie de résonance $A \leftrightarrow B$ lorsqu'on balaye la fréquence ν_1 .

On peut signaler immédiatement qu'ici encore le pompage optique hyperfin constituera une source de limitation de la sensibilité en réduisant le nombre d'atomes portés dans le premier niveau excité B. On peut penser, néanmoins, qu'une méthode de détection non optique pourrait se révéler très sensible du fait qu'elle permettra de s'affranchir des problèmes pratiques posés par la collecte de la lumière de fluorescence auxquels se heurtent les méthodes de détection optique.

On a vu, en effet, que le nombre de photons émis par un jet excité colinéairement ne dépend que de l'intensité du faisceau laser excitateur et du rapport de branchement

de la transition. Malheureusement, l'augmentation de l'intensité du laser confine la zone de fluorescence à une région du jet atomique inaccessible techniquement (à l'intérieur de la cellule de neutralisation). A une puissance laser faible, la zone de fluorescence est plus étendue. Il est alors difficile de collecter le maximum de signal de fluorescence tout en évitant la lumière parasite.

On peut donc espérer que l'ionisation par un champ électrique statique pourra se révéler aussi efficace que la détection du signal de fluorescence et en particulier, lorsque le niveau supérieur de la transition optique étudiée est un niveau de grande durée de vie.

Pour comparer les deux méthodes de détection, nous nous placerons dans des conditions de jet atomique et d'excitation optique de la transition $A \leftrightarrow B$ identiques à celles qui ont été décrites aux chapitres IV et V. Le meilleur rendement (pour les deux méthodes de détection) sera évidemment obtenu pour la transition $F=2 ({}^2S_{1/2}) \rightarrow F'=3 ({}^2P_{3/2})$ du Sodium qui ne subit pas de pompage optique hyperfin. L'excitation optique est réalisée par un laser à colorant monomode, colinéaire au jet, accordé en permanence sur cette composante hyperfine de la raie D_2 . Cette transition ne présentant pas de pompage hyperfin, on pourra maintenir une population atomique importante dans le niveau supérieur (figure 61).

Le deuxième étage de l'excitation optique porte les atomes dans un niveau de Rydberg de n peu élevé ($n = 10d$ et $11d$). Le choix de ces deux niveaux $10d$ et $11d$ résulte d'un compromis entre deux exigences. En effet, l'excitation à partir du niveau $3p$ vers des niveaux de Rydberg nd est d'autant plus efficace, à puissance laser constante, que n est petit puisque les probabilités de transition varient en $\frac{1}{n^3}$, ce qui conduit à choisir n aussi petit que possible. En

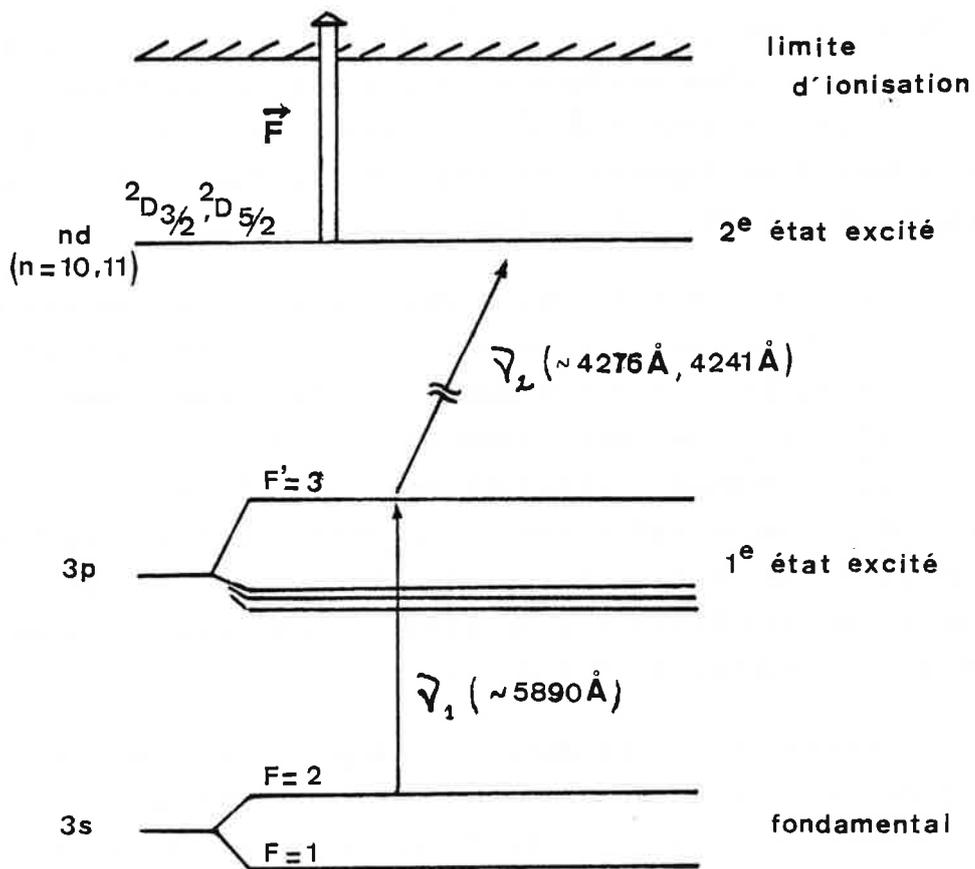


Figure 61

Niveaux d'énergie excités dans l'expérience.

revanche, l'ionisation par champ de ce niveau de Rydberg nécessite un champ électrique d'autant plus fort que n est petit, le champ critique variant en $\frac{1}{n^4}$. De ce fait, il est difficile de descendre en-dessous des niveaux $n = 10$ ou 11 pour lesquels les champs nécessaires sont respectivement de l'ordre de 40 kV/cm et 20 kV/cm.

D'autre part, les longueurs d'onde nécessaires pour réaliser l'excitation optique - 4275,8 Å pour la transition $3p \rightarrow 10d$ et 4241,1 Å pour la transition $3p \rightarrow 11d$ - correspondent à un domaine spectral où les lasers à colorant fonctionnent avec un rendement correct.

Cette deuxième excitation est réalisée par un laser fonctionnant en régime multimode ; il s'agit, par conséquent, d'une excitation large bande. Le faisceau laser correspondant est quasiment perpendiculaire au jet atomique. L'élargissement Doppler résultant de l'ouverture du jet atomique est du même ordre que la largeur spectrale du faisceau lumineux. La vitesse du jet étant très grande, on conçoit que cette condition est satisfaite pour une ouverture angulaire très faible du jet d'atomes rapides.

La région où est produit le champ électrique doit être située assez près de celle où a lieu l'excitation optique précédente pour que l'atome l'aborde en se trouvant encore dans le niveau de Rydberg. La durée de vie de ces états de Rydberg étant de l'ordre de la microseconde et le jet parcourant 20 cm pendant ce temps, il est assez facile de réaliser techniquement cette condition.

Lors d'une mesure spectroscopique sur un isotope inconnu, la fréquence du laser monomode est balayée de façon à explorer la structure hyperfine de la première transition optique $A \rightarrow B$. Pendant ce temps, la fréquence du laser "large bande" ainsi que l'amplitude du champ électrique sont

maintenues fixes, à des valeurs déterminées préalablement pour une mesure sur un isotope stable connu. Le courant d'ions fournit alors le signal de détection.

C. CHAMPS CRITIQUES D'IONISATION

Les états de Rydberg dans lesquels l'électron extérieur est porté à un niveau très excité ont des caractéristiques communes qui leur donnent des propriétés spécifiques très différentes de celles des états profonds.

Les atomes de Rydberg sont principalement des atomes grands (leur rayon atomique est proportionnel à n^2) et fragiles (l'énergie de liaison de l'électron périphérique est proportionnelle à $\frac{1}{n^2}$) ; ils sont très sensibles aux champs extérieurs et il suffit d'une petite quantité d'énergie pour les ioniser. A cause de toutes ces propriétés, l'ionisation par champ électrique est devenue une méthode classique de détection de ces états.

Les résultats des calculs sur l'atome d'Hydrogène peuvent être adaptés à l'étude des alcalins. Les alcalins ont a priori un comportement identique à celui de l'Hydrogène car les configurations de leurs premiers niveaux excités ne diffèrent de ceux de l'Hydrogène que par la présence d'un coeur électronique à symétrie sphérique.

Une approche élémentaire de la méthode de détection par ionisation dans un champ électrique est donnée par un modèle classique qui, néanmoins, rend assez bien compte des phénomènes observés.

Considérons un atome alcalin dans un état de Rydberg et soumis à un champ électrique extérieur \vec{F} de direction parallèle à l'axe \vec{Oz} .

Dans un modèle hydrogénoïde, le mouvement de l'électron de valence est décrit par le potentiel suivant :

$$V(r) = -\frac{1}{r} + F_z \quad \text{en unités atomiques} \quad (1)$$

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 le long de l'axe Oz est représentée sur la figure 62. Au voisinage de $z = 0$, la présence d'un puits de potentiel fait que, pour des énergies E inférieures à E_c , 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 de ces états quasi-liés pourra donc perdre son électron périphérique par effet tunnel. La probabilité par unité de temps d'ionisation par effet tunnel dépend de la hauteur de la barrière de potentiel à franchir, donc de l'énergie E (comptées en prenant l'origine des énergies à la limite d'ionisation de l'atome non perturbé) de l'état étudié par rapport à E_c . Tant que E est très inférieure à E_c , l'état peut être considéré comme stable. Lorsque E se rapproche de E_c , la probabilité d'ionisation par effet tunnel augmente rapidement. Au voisinage de E_c , on passe donc d'une valeur négligeable à une valeur très importante. Lorsque $E > E_c$, il n'y a plus d'états quasi-liés dans ce modèle à une dimension.

On peut donc définir un seuil d'ionisation puisque les valeurs de l'énergie pour lesquelles l'effet tunnel est observé appartiennent à un domaine extrêmement étroit.

Un atome placé dans un champ électrique \vec{F} donné ne s'ionise que si il se trouve dans un état d'énergie $E \geq E_c$. Cette énergie critique est calculable à partir de l'équation (1) :

$$E_c = -2\sqrt{F} \quad (2)$$

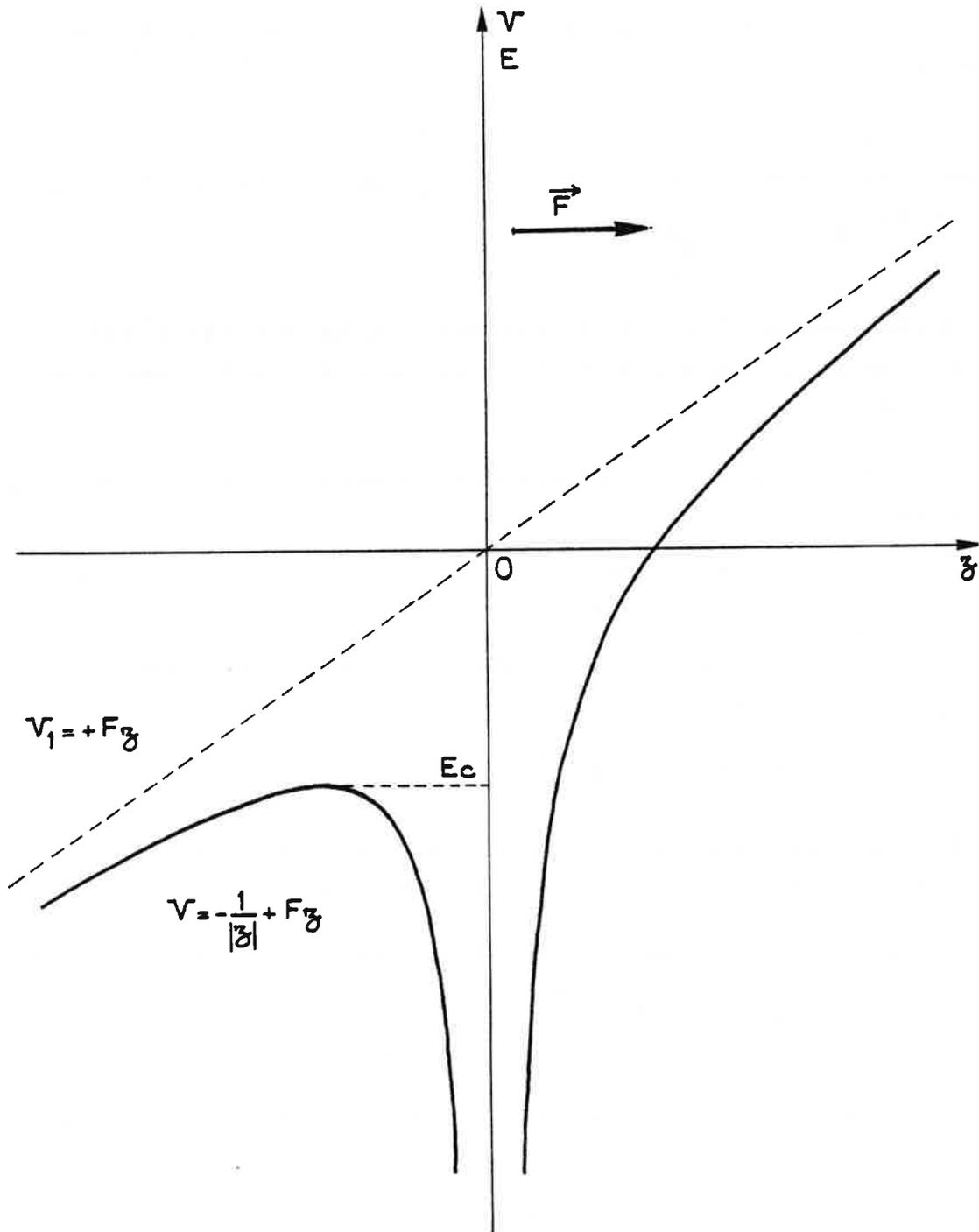


Figure 62

Allure de la fonction $V(r) = -\frac{1}{r} + Fz$ en fonction de la distance z .

D'autre part, pour un atome dans un état d'énergie E donnée, l'ionisation ne se produira que si le champ électrique \vec{F} est suffisamment fort pour abaisser l'énergie du seuil E_c en dessous de l'énergie E de l'état considéré, soit :

$$E \geq E_c = -2\sqrt{F} \Rightarrow F \geq \frac{E^2}{4} \quad (3)$$

A un état d'énergie E donné, il correspond donc un champ critique F_c :

$$F_c = \frac{E^2}{4} \quad (4)$$

au-dessus duquel l'atome s'ionisera. Si on néglige l'effet Stark, on peut remplacer E par l'énergie E_0 de l'atome non perturbé.

Le nombre quantique principale effectif n^* est défini par :

$$E_0 = - \frac{1}{2(n^*)^2} \quad (5)$$

L'on peut exprimer la valeur du champ critique F_c en fonction de n^* :

$$F_c = \frac{1}{16(n^*)^4} \quad (6)$$

On trouve ainsi une loi de variation du champ critique F_c qui s'ionise pour les séries d'états de Rydberg nd .

Dans le système d'unités S.I., cette loi se réécrit :

$$F_c = \frac{51,42 \cdot 10^{10}}{16(n^*)^4} \quad (7)$$

On peut calculer alors les valeurs de F_c pour les états de Rydberg nd où $n = 10, 11, 12$. On pose : $n^* = n - \epsilon_d$, où $\epsilon_d = 0,014$ est le petit défaut quantique correspondant à la série nd dans le Sodium [60] :

$$F_c(10 d) = 32,32 \text{ kV/cm}$$

$$F_c(11 d) = 22,06 \text{ kV/cm}$$

$$F_c(12 d) = 15,57 \text{ kV/cm.}$$

La loi de variation du champ critique en fonction du nombre quantique effectif de l'état de Rydberg étudié est obtenue à l'aide d'un modèle élémentaire à une dimension pour le potentiel et au prix d'une approximation supplémentaire (effet Stark nul). Néanmoins, cette loi prédit bien les résultats expérimentaux.

D. DISPOSITIF EXPERIMENTAL

Nos expériences ont été réalisées sur le jet atomique rapide de Sodium mis au point au laboratoire et décrit dans la première partie de l'exposé. La disposition relative des différents éléments du montage expérimental est représentée sur la figure 63.

L'excitation optique est réalisée à l'aide de deux lasers à colorant. Le premier, colinéaire au jet atomique, fonctionne en régime continu monomode et accordable. Il assure le premier étage de l'excitation optique. Pour le deuxième étage de cette excitation, on a utilisé un dispositif comprenant essentiellement deux miroirs plans placés en regard l'un de l'autre entre lesquels un faisceau laser effectue une série d'aller-retours. Ce dispositif sera nommé par la suite "passage multiple de la lumière". Le faisceau lumineux issu d'un deuxième laser à colorant, fonctionnant en régime multimode, lui aussi continûment accordable, croise quasi orthogonalement le jet atomique. Les réflexions successives de ce faisceau sur les deux miroirs multiplient le nombre d'intersection entre le jet atomique et le faisceau lumineux, ce qui permet d'allonger le temps d'interaction entre le rayonnement large bande issu du laser multimode et les atomes.

A la sortie du passage multiple, les atomes qui ont été excités et portés dans un état de Rydberg de n peu élevé pénètrent entre les deux plaques d'un condensateur plan

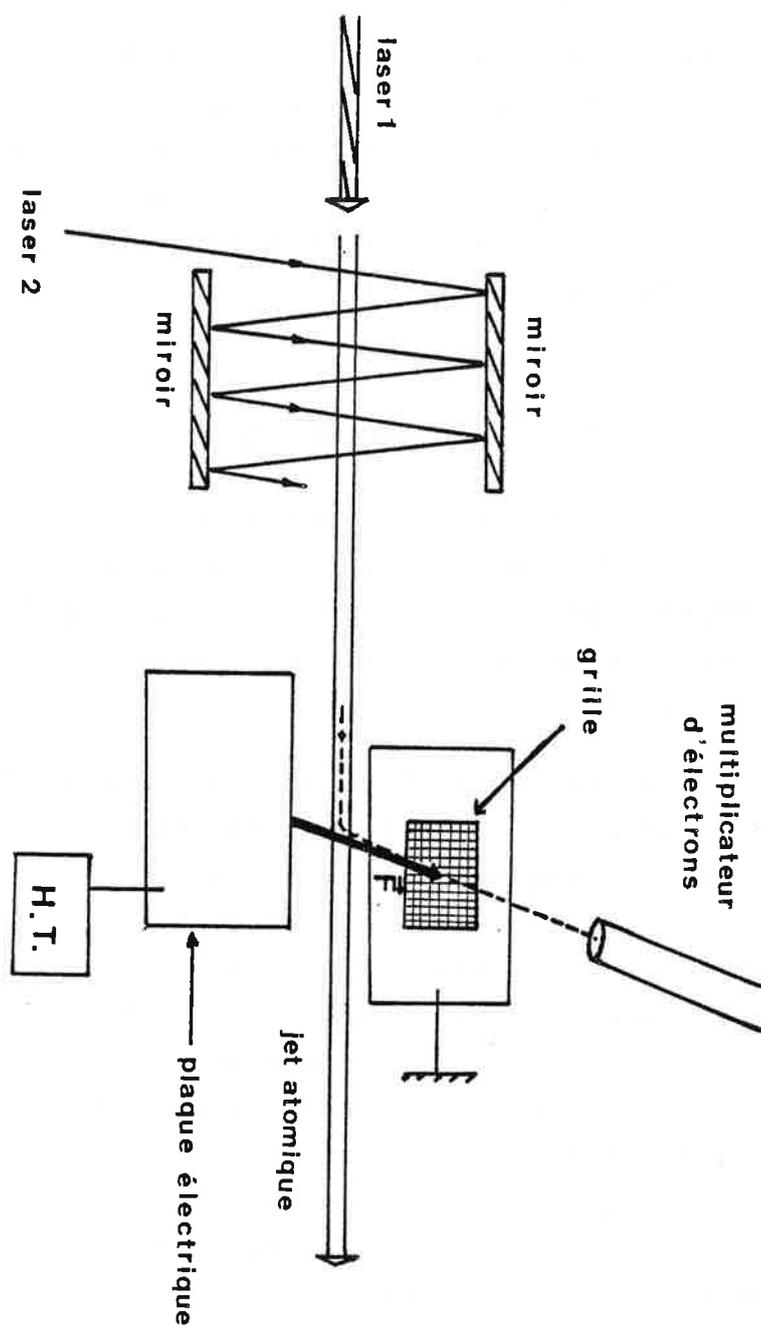


Figure 63

Disposition relative des différents éléments du montage expérimental.

(voir figure 63) et s'ionisent sous l'action du champ électrique qui y règne. Dans le cas présent, ce sont les ions formés qui sont détectés et non les électrons ; l'inverse pourrait également se faire moyennant certaines modifications. L'appareil détectant les ions est un multiplicateur d'électrons secondaires ; la détection de particules positives est plus facile parce qu'elle permet de maintenir l'anode à un potentiel voisin de celui de la masse, ce qui simplifie le couplage avec l'électronique de sortie.

Nous décrivons dans ce paragraphe les différents éléments du montage mis en place pour réaliser cette expérience de détection non optique des résonances atomiques, sans revenir sur les parties du dispositif communes aux autres expériences, qui ont été déjà décrites ailleurs (chambre four, neutralisation du jet d'ions, etc...). Mis à part les lasers, les particularités du montage résident surtout dans les modifications apportées au niveau de la chambre d'interaction.

1) Les lasers

a) Le laser colinéaire au jet atomique

Ce laser sert à l'excitation du premier étage correspondant à la transition $3s \rightarrow 3p$. C'est un laser à colorant commercial Coherent Radiation 599 pompé par un laser ionique. Le colorant utilisé est la Rhodamine 6G dont le spectre de fluorescence est bien adapté à la fréquence de la transition étudiée (5890-5896 Å). La puissance émise en sortie peut atteindre aisément 100 mW pour 3 W de puissance de pompage. Le fonctionnement a eu lieu le plus souvent à une puissance de pompage inférieure, conduisant à des intensités de sortie du laser à colorant de l'ordre de 30 mW environ (au moins).

Le rayonnement de ce laser, monochromatique, est piloté en fréquence par le sigmamètre, déjà décrit au chapitre II (dispositif expérimental). Le sigmamètre permet d'accorder la fréquence d'émission sur la transition hyperfine en obser-

vant le signal de fluorescence du jet.

Cette fréquence est alors bloquée sur le sommet de la raie de fluorescence grâce au sigmamètre qui permet d'asservir le laser à colorant sur une longueur d'onde donnée pendant plusieurs heures.

b) Le laser orthogonal

Le deuxième étage de l'excitation lumineuse vers le niveau de Rydberg est assuré par un laser à colorant accordable commercial (Coherent Radiation Modèle 599) pompé par un laser à Kr^+ (Coherent Radiation 3000 K) fonctionnant sur les raies U.V. Le laser à colorant fonctionne en régime multimode.

Le colorant utilisé est du Stilbène 3 dont le spectre de fluorescence est à peu près centré sur 4300 Å. En raison de la faible puissance délivrée par le laser pompe ($\sim 1,8$ Watt sur les raies U.V.), l'intensité mesurée en sortie du laser à colorant est en moyenne de l'ordre de 80 à 100 mW entre 4240 Å et 4280 Å. Cette intensité est toutefois suffisante pour exciter efficacement les niveaux $10d$ (4276 Å) et $11d$ (4241 Å). En revanche, la puissance émise décroît rapidement pour les longueurs d'onde plus courtes rendant plus difficile l'excitation des atomes vers les états de Rydberg plus élevés (10 mW à peine à 4216 Å, longueur d'onde de la transition $3p \rightarrow 12d$).

La largeur spectrale du rayonnement fourni par le laser à colorant a été mesurée à l'aide d'un interféromètre Fabry-Perot plan. Elle est égale à $0,3 \text{ cm}^{-1}$ aux fréquences de travail. Le balayage de la fréquence centrale de la bande d'émission est assuré par la rotation d'un filtre biréfringent (filtre de Lyot) placé à l'intérieur de la cavité. Ce mouvement est assuré à l'aide d'une vis micrométrique.

Un moteur électrique assure une rotation lente (2 tours/heure) et régulière de la vis micrométrique.

La recherche de la longueur d'onde correspondant à la transition $3p \rightarrow$ niveau de Rydberg s'effectue d'abord manuellement en observant simultanément, grâce à un spectromètre à réseau, la lumière laser et le spectre d'une lampe à vapeur de Rubidium fournissant des raies de référence au voisinage de longueurs d'onde intéressantes. La fréquence d'émission du laser est ensuite balayée à l'aide du moteur, le laser colinéaire étant, bien sûr, toujours asservi sur une transition hyperfine de la raie D_1 ou D_2 .

Le trajet du faisceau laser entre les deux miroirs du dispositif de multiples passages correspond à un parcours de 40 m environ. Il est donc nécessaire d'utiliser un montage télescope (beam expander) pour minimiser la divergence du faisceau laser. Le diamètre du faisceau laser à la sortie du montage télescope est de l'ordre de 5 mm. Il reste pratiquement constant sur tout le trajet utile. La direction d'incidence du faisceau sur le jet atomique est très proche de l'incidence normale (voir ci-dessous).

2) Le dispositif de passages multiples de la lumière

a) Description du dispositif

Ce dispositif est représenté de façon très schématique sur la figure 64. L'ensemble du dispositif a été installé à l'avant de la chambre d'interaction, au-dessus de l'emplacement du photomultiplicateur servant à détecter la fluorescence émise par le jet atomique excité par un laser colinéaire.

Le passage multiple est essentiellement constitué par deux miroirs plans, longs de 12 cm et larges de 2,5 cm, placés en regard l'un de l'autre à une distance de 50 cm. Ces miroirs multicouches diélectriques ont un pouvoir réflec-

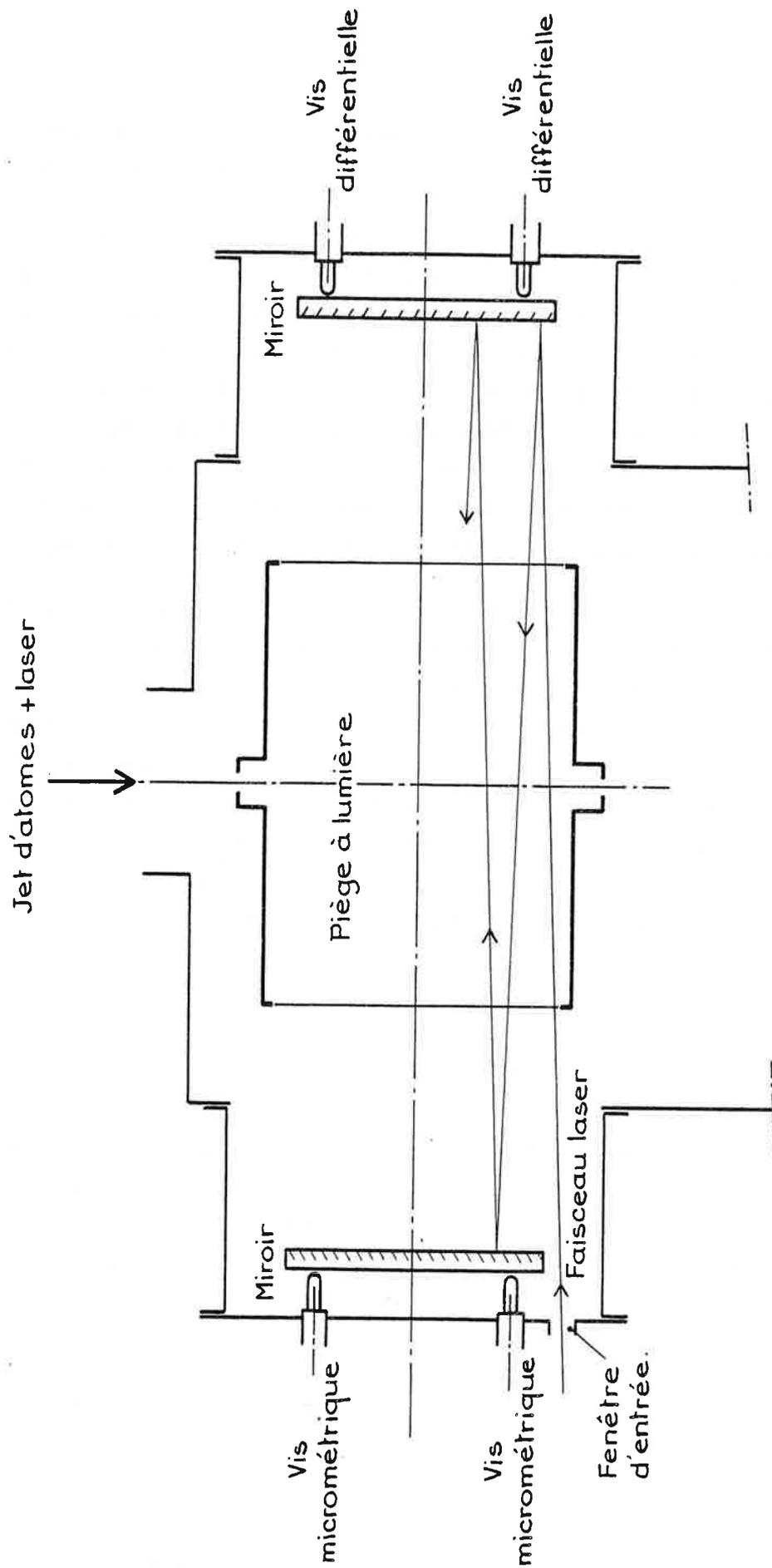


Figure 64 : Dispositif de passages multiples du faisceau du laser multimode.

teur maximum aux longueurs d'onde de fonctionnement du laser multimode (coefficient de réflexion $\sim 98,5\%$ à $\lambda \approx 4250 \text{ \AA}$).

Chacun de ces miroirs est fixé sur une monture orientable. Trois vis permettent de régler cette orientation. Un premier réglage est effectué avec l'ensemble du dispositif à l'air (enceinte ouverte). Une fois ce réglage terminé, on fait le vide à l'intérieur de l'enceinte. La pression atmosphérique qui s'exerce de l'extérieur sur les parois de l'enceinte modifie le réglage précédent et un nouvel ajustement sous vide est donc nécessaire. Cet ajustement est effectué sur un seul miroir (miroir de gauche sur la figure 64). En effet, la monture de ce miroir s'appuie sur les têtes de trois butées micrométriques différentielles soudées sur des soufflets en acier inox (non représentés sur le schéma). L'ensemble est conçu de façon à permettre le réglage fin du miroir de l'extérieur de l'enceinte, tout en assurant l'étanchéité parfaite de l'ensemble.

Le faisceau lumineux issu du laser multimode pénètre dans l'enceinte par une petite fenêtre placée sur l'une des faces latérales de la chambre et se réfléchit sur le miroir adossé à la face opposée. L'angle d'incidence sur ce miroir est assez proche de 90° pour que le faisceau lumineux subisse un grand nombre de réflexions à l'intérieur du dispositif. Le faisceau laser coupera ainsi le jet atomique de multiples fois, à intervalle très serré. La zone d'interaction entre la lumière laser et les atomes se trouve à l'intérieur d'un boîtier plat, peint en noir. Ce boîtier est percé horizontalement d'ouvertures destinées au passage du jet atomique et des faisceaux lasers. Dans la direction verticale, une ouverture en direction du photomultiplicateur permet de continuer à observer la fluorescence du jet à 5890 \AA pendant le réglage de la fréquence du laser monomode colinéaire. L'ensemble du dispositif joue le rôle de piège à lumière, en minimisant les réflexions parasites en direction du photomultiplicateur. Il est par ailleurs relié à un vase à

azote liquide extérieur à l'enceinte, ce qui permet de maintenir la pression à un niveau très bas au voisinage de la zone d'interaction.

b) Fonctionnement du dispositif

Les probabilités de transition vers les niveaux de Rydberg sont très faibles et lors de l'interaction à angle droit entre le faisceau lumineux et le jet atomique se propageant à très grande vitesse, la durée de l'interaction atomes-rayonnement est insuffisante pour transférer une proportion raisonnable des atomes qui se trouvent dans l'état $3p$ vers l'état de Rydberg nd ($n = 10d$ ou 11). Le dispositif de passages multiples a donc été conçu pour allonger la région d'interaction. Compte tenu de la longueur des miroirs (~ 10 cm) et de la vitesse du jet atomique ($2 \cdot 10^5$ m/s), la durée de l'interaction sera, grâce à ce dispositif, comparable à la durée de vie du niveau de Rydberg ($\tau \sim 1$ μ s).

Le fonctionnement du dispositif est schématisé sur la figure 65. Le faisceau laser est induit à l'intérieur du dispositif et se réfléchit successivement sur chaque miroir. L'angle d'incidence au niveau de la première réflexion est égal à θ . Compte tenu de la dimension transversale du faisceau laser (5 mm) et de l'écartement des miroirs (50 cm), l'angle θ le plus faible réalisable est de l'ordre de 10^{-2} radian.

Afin que le décalage Döppler vu par les atomes du jet soit le même en I et J, le miroir M_1 est réglé parallèle au jet atomique. θ correspond donc également à l'angle d'incidence du faisceau laser sur le jet. Les deux miroirs sont disposés de façon à former un coin ; dans cette disposition, les plans des miroirs forment entre eux l'angle β . Après deux réflexions (une sur chaque miroir), le faisceau lumineux tourne de 2β . Au bout de n réflexions, il a donc tourné de $2n\beta$. Si n est assez grand, cet angle peut devenir supérieur à θ . Le faisceau lumineux revient alors en sens inverse et ressort du dispositif de passages multiples, pa-

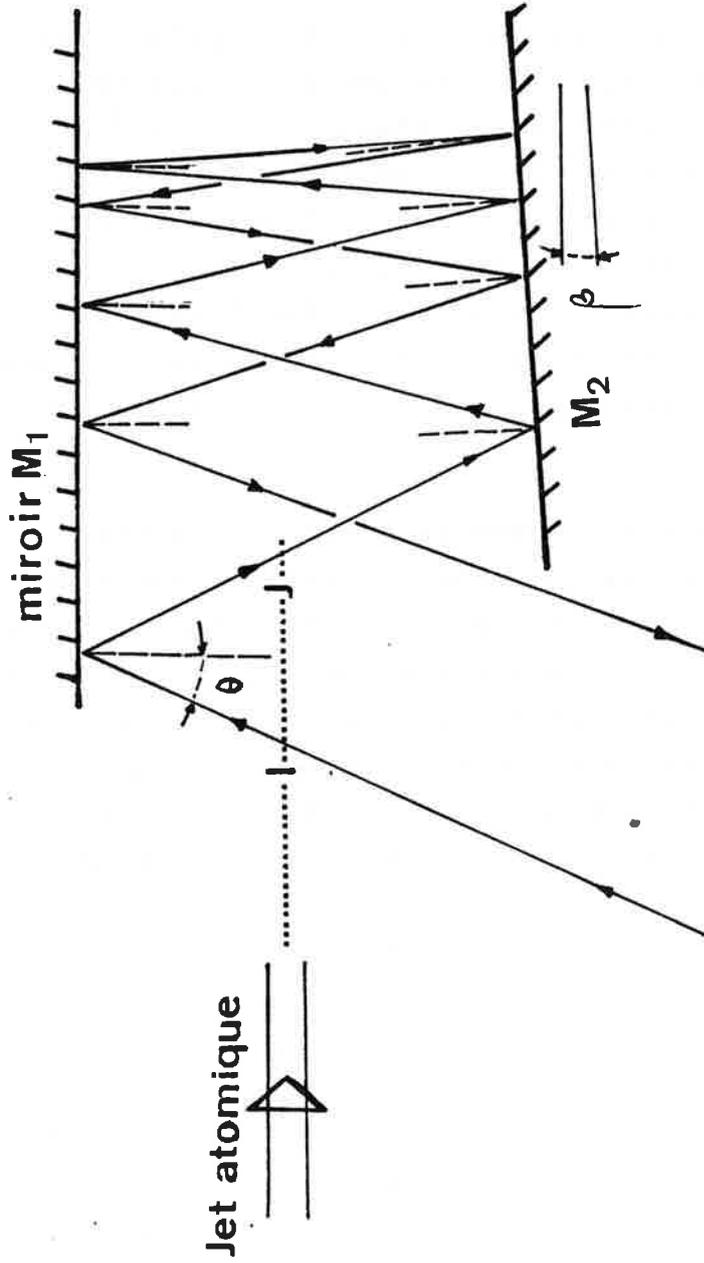


Figure 65 : Principe de fonctionnement du dispositif de passages multiples de la lumière. Le miroir M_1 est parallèle au jet atomique, le miroir M_2 fait l'angle β avec le miroir M_1 : I et J sont deux points d'intersection successifs du jet atomique avec le faisceau laser.

rallèlement au faisceau incident mais en sens inverse. Le nombre de réflexions sur les miroirs est alors doublé ainsi que le nombre d'intersections entre le faisceau lumineux et le jet atomique ; l'espace compris entre les deux miroirs apparaît alors uniformément éclairé par une nappe de lumière bleue.

L'ouverture angulaire du jet atomique a été mesurée au cours des expériences précédentes utilisant un faisceau laser monomode. Elle est de l'ordre de $5 \cdot 10^{-3}$ radian. La largeur Döppler résultante, pour l'excitation par le faisceau laser multimode, est égale à 2,4 GHz. L'angle d'incidence du faisceau laser variant de $+\theta$ à $-\theta$ ($\theta \sim 10^{-2}$ radian) entre les différents passages, le décalage Döppler résultant est de ± 5 GHz. On s'attend donc à des largeurs spectrales de 10 GHz pour les résonances induites par le laser multimode.

D'autre part, d'une réflexion à l'autre sur le même miroir, le faisceau lumineux tourne de l'angle 2β . On compte en moyenne 20 taches de réflexion sur chaque miroir ; on a donc $20 \times 2\beta \sim \theta$. A chaque réflexion, la fréquence vue par les atomes est décalée par effet Döppler d'une quantité correspondant à une variation angulaire de $2\beta \sim \frac{\theta}{20}$. Ce décalage en fréquence est par conséquent égal à 250 MHz. Le balayage angulaire que l'on obtient dans le dispositif de multiples passages permet ainsi de couvrir de façon presque continue toute la largeur Döppler du jet atomique

c) Difficultés de réglage du dispositif

Ces difficultés tiennent au fait que le réglage fin des miroirs doit être effectué de l'extérieur, l'enceinte étant sous vide. Ce réglage consiste en premier lieu à attaquer le miroir opposé à la fenêtre d'entrée du faisceau laser sous l'incidence la plus proche de l'incidence normale tout en s'assurant que le faisceau réfléchi revient bien sur le deuxième miroir. Il faut ensuite former un coin tout en

maintenant les plans des miroirs parfaitement verticaux. Lorsque cette condition est réalisée, le faisceau lumineux revient exactement sur lui-même. Il reste à vérifier que ce faisceau lumineux s'étale en ligne droite et à mi-hauteur sur toute la longueur des miroirs. Cette hauteur correspond théoriquement à la hauteur du jet atomique.

Ces réglages "à vue d'oeil" doivent être souvent repris en cours d'expérience en cherchant à optimiser le signal obtenu.

Les réglages manuels ne sont pas assez précis et l'optimisation du signal d'ions doit être achevée en déplaçant deux des butées micrométriques ainsi que le miroir d'entrée du faisceau incident, à l'aide de moteurs électriques de vitesse de rotation très lente.

Malgré cette automatisation, le réglage du dispositif de passages multiples reste très délicat et c'est sans aucun doute à cet endroit que des aménagements supplémentaires apporteront une amélioration certaine dans le signal d'ions détecté en bout d'expérience.

3) Le condensateur

a) Description générale

Le champ électrique est créé en appliquant une différence de potentiel constante entre deux plaques parallèles situées de part et d'autre du jet. Ces plaques sont en acier inoxydables et leurs faces en regard sont soigneusement polies (figure 66).

Les atomes excités dans le niveau de Rydberg sont brisés dans le champ électrique. Les ions formés sont accélérés et dirigés par le champ vers le détecteur. Pour atteindre celui-ci, les ions doivent traverser la plaque du condensateur qui est portée à la masse. Cette plaque a été

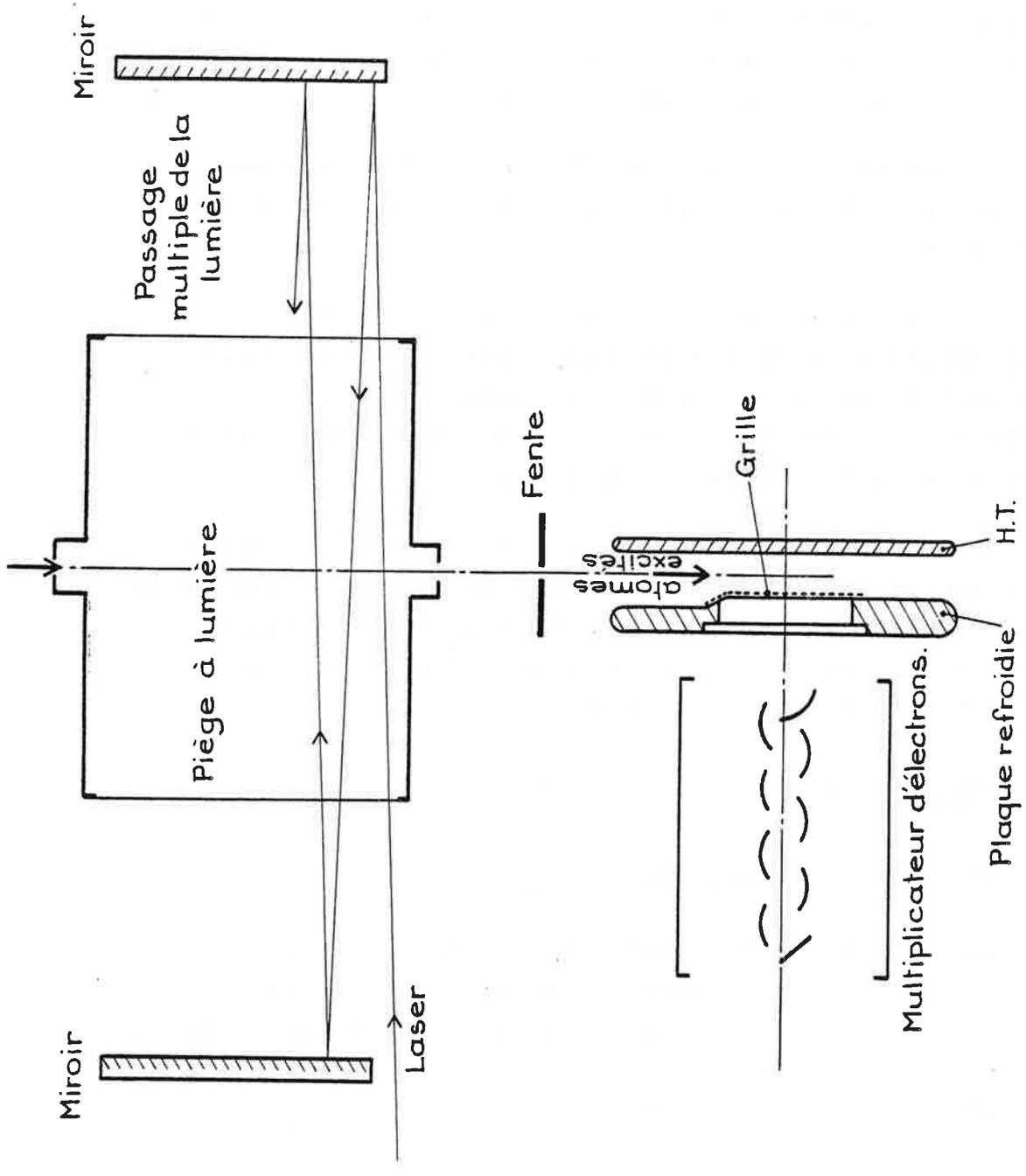


Figure 66 : Disposition relative des régions d'intersection avec les lasers, à l'intérieur du piège à lumière, puis avec le champ électrique, entre les deux plaques du condensateur. Détection des ions par le multiplicateur d'électrons.

percée dans ce but d'un trou de 3 cm de diamètre qui laisse passer les ions vers la cathode du détecteur. Ce trou est recouvert d'une grille métallique soudée sur une bague métallique enfoncée à force dans le trou. Cette grille découpée dans une fine toile d'acier est beaucoup plus plane qu'un réseau de fils métalliques entrecroisés. L'homogénéité du champ électrique dans cette région est ainsi conservée.

b) Seuils d'ionisation multiples

La plaque qui porte la grille présente un décrochement, aux deux tiers de sa longueur environ (voir figure 66), légèrement en avant du détecteur. L'épaisseur du condensateur passe en cet endroit assez brusquement de $e + \Delta e$ à e , ce qui se traduit par une augmentation du champ électrique de F à $F + \Delta F$. Il reste à ajuster la tension appliquée au condensateur de façon que le champ F soit sous-critique et que $F + \Delta F$ soit sur-critique pour l'état de Rydberg considéré ($F < F_c < F + \Delta F$).

Dans cette configuration, les atomes de Rydberg ne s'ioniseront que lorsqu'ils arriveront à hauteur du décrochement tandis que les ions parasites, toujours présents dans le jet, seront éliminés par déflexion dès leur entrée entre les plaques du condensateur.

Initialement, on a choisi $e = 10$ mm et $\Delta e = 3$ mm, ce qui correspond à une augmentation de 30 % du champ électrique au passage du décrochement.

Si les atomes de Rydberg présentaient un seuil d'ionisation bien défini, il ne serait pas nécessaire de prévoir un saut de champ électrique aussi important. En fait, le phénomène d'ionisation est plus complexe et plusieurs voies d'ionisation sont possibles, caractérisées par des seuils différents [61], [62], [63]. Il faut franchir tous les seuils à la fois au passage du décrochement d'où

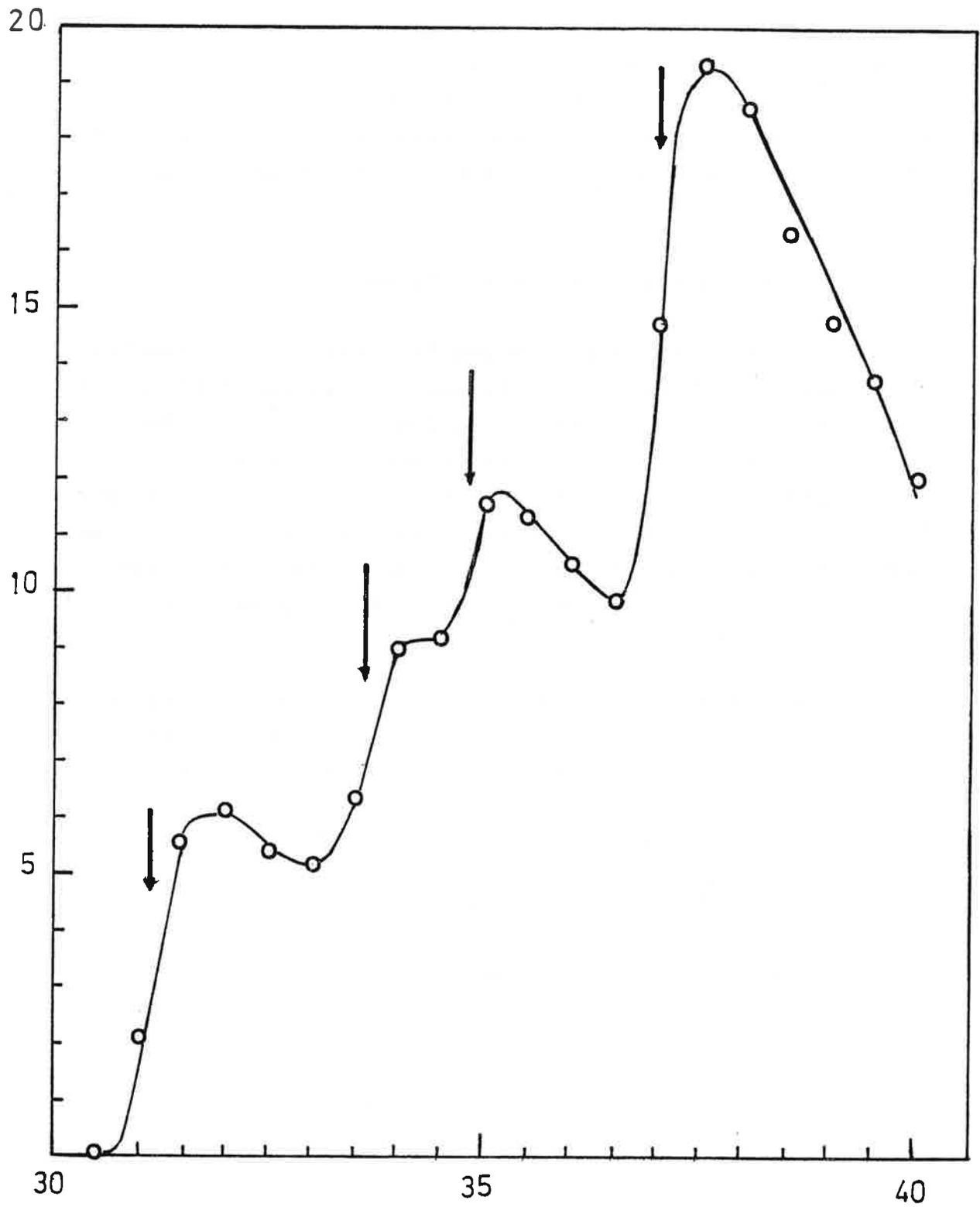


Figure 67

Phénomène de seuils multiples d'ionisation observé dans le cas du niveau 11d .

la nécessité d'un décrochement relativement important.

Ces seuils multiples sont mis en évidence si l'on étudie le signal d'ions en fonction du champ ionisant F . Les courbes observées présentent une série de plateaux séparés par des augmentations brusques du signal. La figure 67 montre le phénomène de seuils multiples enregistrés dans le cas du niveau de Rydberg $11d$ avec un condensateur d'épaisseur $e = 15$ mm ($\Delta e = 3$ mm). On peut remarquer sur la figure que les seuils d'ionisation surviennent pour des tensions s'échelonnant entre 31 kV et 38 kV (soit des champs critiques de 20,7 kV/cm à 25,3 kV/cm) et que, par conséquent, le décrochement relatif $\frac{\Delta e}{e} = 20\%$ choisi dans le cas présent est insuffisant.

Pour ioniser tous les atomes de Rydberg à peu près au même endroit, il est donc nécessaire de prévoir un saut de champ électrique suffisamment important, soit en augmentant l'importance relative du décrochement par rapport à l'épaisseur, soit en modifiant la géométrie du condensateur comme indiqué sur la figure 68.

Les résultats obtenus dans l'un ou l'autre cas sont équivalents.

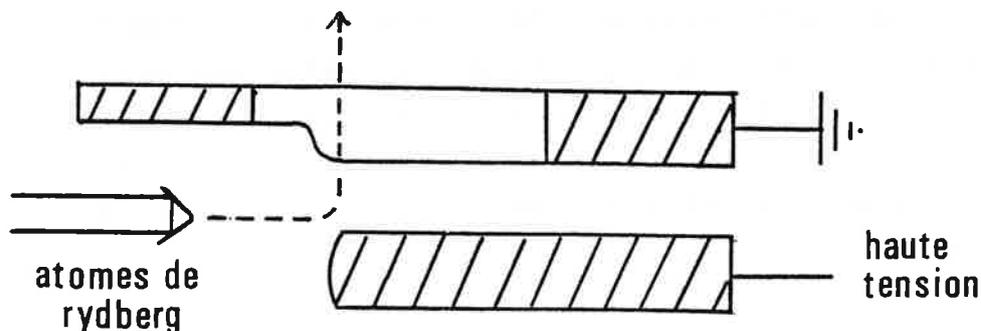


Figure 68 : Détail de la géométrie du condensateur adoptée.

Nous n'avons plus observé de seuils multiples d'ionisation en faisant varier le champ électrique, avec cette nouvelle disposition de plaques.

4) Détection des ions

a) Collecte des ions

Les ions sont formés en moyenne à égale distance des deux plaques du condensateur. L'énergie qui leur est fournie par le champ électrique depuis leur formation jusqu'à la traversée de la grille est égale à $\frac{eU}{2}$ où U est la différence de potentiel maintenue entre les plaques.

La composante verticale de la vitesse des ions dans la direction du champ \vec{F} , à la traversée de la grille, est alors égale à $\sqrt{\frac{eU}{m}}$. Pour un champ électrique de l'ordre de 30 kV/cm, cette vitesse atteint $3,5 \cdot 10^5$ m/s. Comme la composante horizontale de la vitesse des ions est égale à la vitesse du jet atomique ($2 \cdot 10^5$ m/s), on peut estimer ainsi l'angle sous lequel les ions traversent la plaque supérieure, à travers la grille.

b) Le détecteur

C'est un multiplicateur d'électrons secondaires 17 dynodes de marque BALZERS. La cathode est polarisée négativement et la dernière dynode qui fournit les impulsions de sortie se trouve à un potentiel voisin de zéro. Avec une tension de polarisation de 3000 Volts environ, on obtient un gain en courant voisin de 10^7 .

c) Le traitement du signal

Les impulsions fournies par le multiplicateur d'électrons secondaires sont amplifiées puis analysées et mises en

forme par un discriminateur à seuil réglable. A la sortie du discriminateur, les impulsions calibrées sont envoyées soit dans un intégrateur qui fournit un signal analogique proportionnel au nombre d'ions détectés par seconde, soit dans un analyseur multicanaux (Numelec Interzoom) travaillant en mode multi-échelles.

Une rampe de tension variant de -20 V à +20 V est appliquée à la cellule d'échange de charges et produit un balayage Döppler de la résonance optique correspondant au premier étage de l'excitation lumineuse. Le balayage horizontal de l'analyseur multicanaux est déclenché en synchronisme avec cette rampe, ce qui permet d'additionner N spectres identiques et d'augmenter ainsi le rapport signal sur bruit. Le spectre stocké ainsi dans l'analyseur peut être ensuite reproduit sur un enregistreur graphique et éventuellement traité (lissages de courbes, par exemple).

d) Amélioration du rapport signal/bruit

Les premiers enregistrements réalisés avec le dispositif expérimental tel qu'il vient d'être décrit se présentaient sous la forme d'un signal très faible survenant au dessus d'un fond très important. La figure 69 reproduit l'un de ces enregistrements réalisé en excitant les atomes vers le sous-niveau hyperfin $F'=3$ ($^2P_{3/2}$) puis vers le niveau de Rydberg $10d$. On peut voir que le fond est de l'ordre de 490 000 coups alors que le signal, tous réglages optimisés, est de l'ordre de 180 000 coups à peine. Parmi les différentes améliorations qui ont été apportées au dispositif expérimental deux surtout ont paru décisives du point de vue de l'élimination de ce fond et méritent d'être citées :

- En premier lieu, une fente verticale de 4 mm a été installée à l'entrée du condensateur (voir figure 66). Cette fente est destinée à collimater le jet atomique dans la direction horizontale. On espère ainsi minimiser les chocs

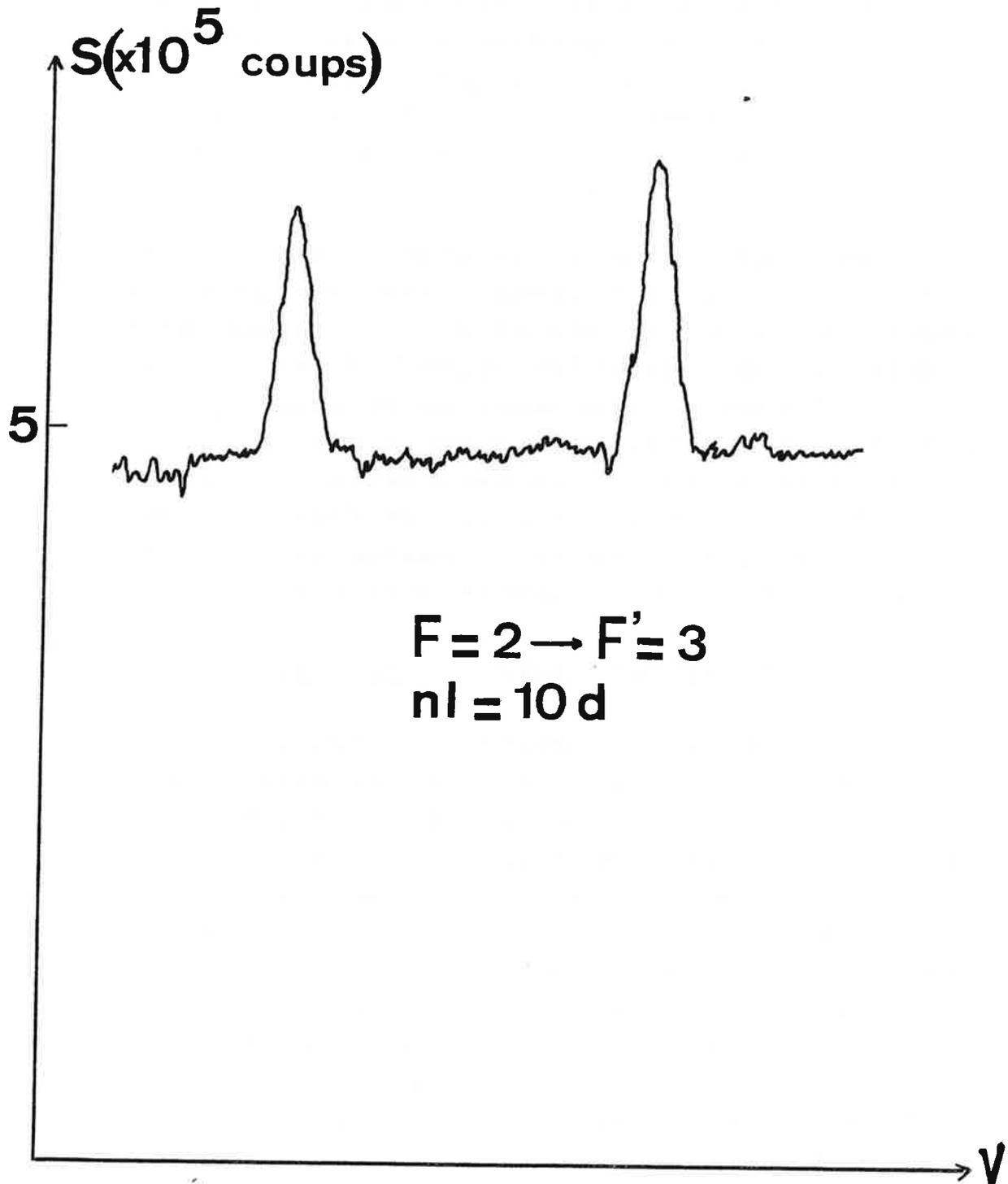


Figure 69

Enregistrement réalisé sans les améliorations citées au §.D-4d.

éventuels des atomes neutres rapides sur les plaques du condensateur et les ionisations qui pourraient en résulter.

- L'amélioration la plus importante a consisté à abaisser la pression résiduelle entre les plaques du condensateur. Ceci a été obtenu en refroidissant à la température de l'azote liquide la plaque du condensateur qui est reliée à la masse. On arrive ainsi à réduire le signal de fond à un niveau pratiquement nul pour des intensités faibles du jet d'atomes neutres (quelques 10^7 atomes par seconde) et à 5 % du signal pour des intensités supérieures (pour 10^{10} atomes neutres par seconde). Le fond peut en effet être décomposé en deux parties :

- une partie proportionnelle à l'intensité du jet d'atomes rapides incident, qui est ramené de 300 % à 5 % en refroidissant le condensateur ;

- une partie indépendante du jet incident qui n'est plus que deux coups par seconde lorsque le condensateur est refroidi.

E. MESURES ET RESULTATS

1) Exemples d'enregistrements

Un enregistrement réalisé en accordant le laser colinéaire sur la transition hyperfine $F=2$ ($^2S_{1/2}$) \rightarrow $F'=3$ ($^2P_{3/2}$) et le laser multimode sur la transition $3p \rightarrow 11d$ est reproduit dans la figure 70.

Le premier enregistrement a été réalisé avec un jet d'atomes neutres d'environ $1,4 \cdot 10^{11}$ atomes/s. Le signal d'ions correspond à 400 000 coups par seconde environ, comptés à l'aide de l'analyseur multicanal pendant 0,2 seconde par canal. Le fond est égal à 11 000 coups/seconde, ce qui correspond à un rapport signal/fond voisin de 37. On déduit

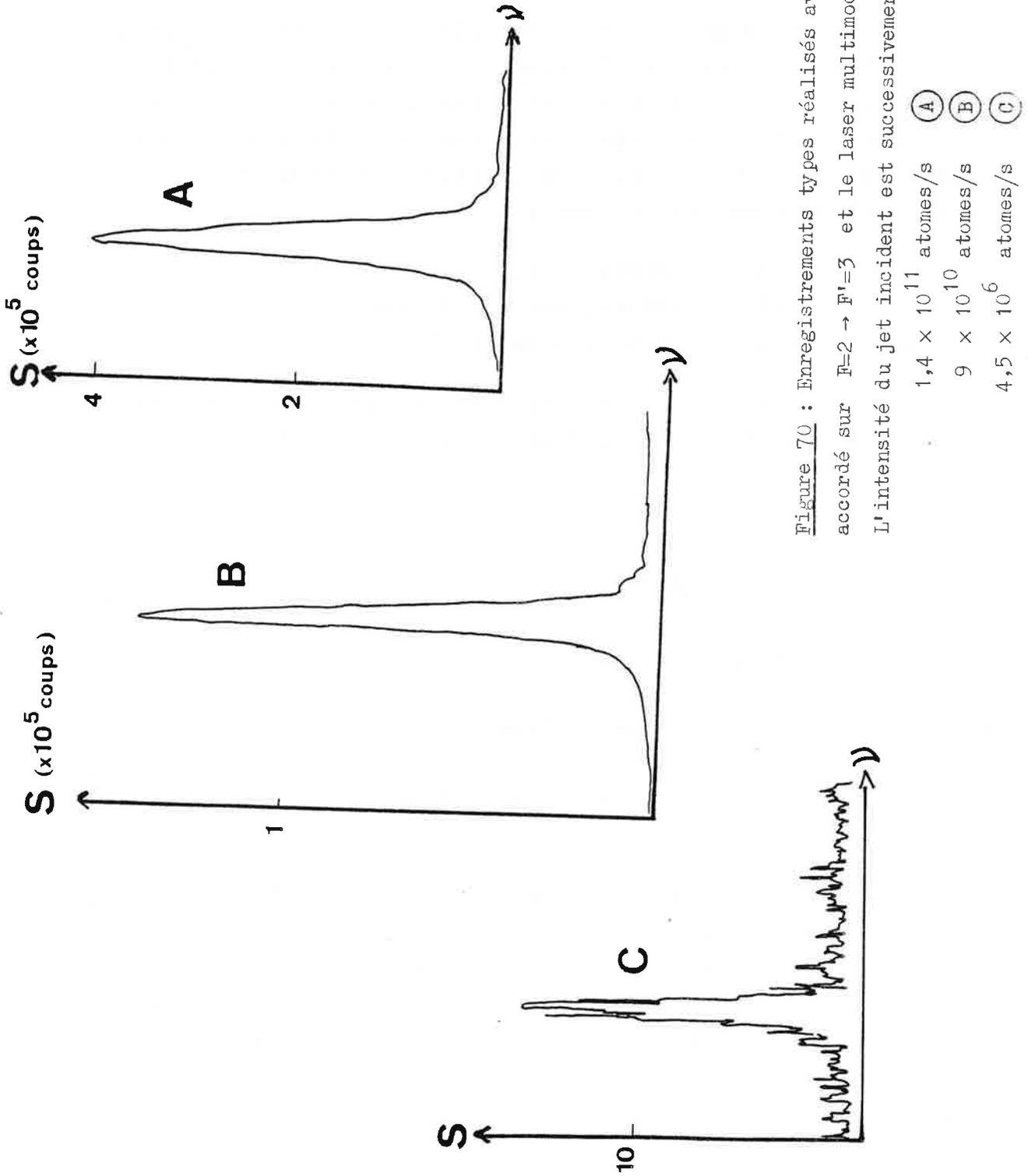


Figure 70 : Enregistrements types réalisés avec le Laser monomode accordé sur $F=2 \rightarrow F'=3$ et le laser multimode sur $n,l = 11d$.

L'intensité du jet incident est successivement :

- (A) $1,4 \times 10^{11}$ atomes/s
- (B) 9×10^{10} atomes/s
- (C) $4,5 \times 10^6$ atomes/s

de cet enregistrement un rendement de l'ordre de $2,8 \cdot 10^{-6}$ ou, autrement dit, on détecte un ion pour $3,5 \cdot 10^5$ atomes incidents par seconde.

Le deuxième enregistrement a été obtenu pour un jet incident un peu plus faible ($9 \cdot 10^{10}$ atomes neutres par seconde). On ne détecte plus que 140 000 ions par seconde, correspondant à un rendement de l'ordre de $1,5 \cdot 10^{-6}$ donc à un ion détecté pour $6,4 \cdot 10^5$ atomes incidents par seconde.

Quant au troisième enregistrement, l'intensité du jet incident est beaucoup plus faible ($4,5 \cdot 10^6$ atomes par seconde). On ne détecte plus que 15 coups par seconde, le rendement restant du même ordre de grandeur que dans les deux premiers enregistrements : $3,3 \cdot 10^{-6}$ soit un ion pour $3 \cdot 10^5$ atomes par seconde. Le bruit qui entache cet enregistrement est de l'ordre de 2 coups par seconde, ce qui donne un rapport signal/bruit voisin de 7 pour $4,5 \cdot 10^6$ atomes neutres incidents par seconde. Le rapport signal sur bruit serait donc égal à l'unité pour $6 \cdot 10^5$ atomes incidents. Cet enregistrement a été réalisé avec un temps de comptage de 0,4 s par canal de l'analyseur. Si on accumule le nombre de coups enregistrés par l'analyseur multicanal pendant 1 seconde sur chaque canal, et si on suppose que le bruit est statistique, la limite de sensibilité est réduite à $4 \cdot 10^5$ atomes par seconde. Accumulés pendant 10 secondes, cette limite tombera à $1,3 \cdot 10^5$ atomes par seconde.

2) Limites de sensibilité

Les enregistrements présentés précédemment n'ont pas été obtenus de façon exceptionnelle. Bien au contraire, ils représentent une valeur moyenne de la sensibilité de la méthode qui dépend, bien sûr, de la qualité des différents éléments du dispositif expérimental. D'autre part, la transition $3p \rightarrow 11d$ est moins favorable du point de vue de l'excitation lumineuse que la transition $3p \rightarrow 10d$. La probabilité de transition correspondante est en effet

légèrement inférieure et, de surcroît, la puissance lumineuse disponible à la longueur d'onde de la transition $3p \rightarrow 11d$ ($\sim 4242 \text{ \AA}$) est bien plus faible que celle que délivre le laser multimode à la longueur d'onde de la transition $3p \rightarrow 10d$.

C'est ce qui explique que le meilleur rendement ait été obtenu sur cette dernière transition.

Il faut noter que dans toutes ces expériences le laser monomode est asservi en permanence sur la transition hyperfine $F=2 \rightarrow F'=3$ de la raie D_2 pour laquelle il n'y a pas de pompage hyperfin. La puissance de ce faisceau laser colinéaire envoyée sur le jet rapide est de plus relativement élevée ($\approx 30 \text{ mW}$). La sensibilité de la méthode diminuerait fortement si l'on diminuait la puissance de ce laser ou si l'on considérait des transitions pour lesquelles il y a pompage hyperfin.

L'enregistrement reproduit en figure 71 correspond ainsi à un signal d'ions de quelques 220 000 ions produits avec une intensité de jet incident de $2 \cdot 10^{10}$ atomes neutres par seconde. On en déduit dans le cas présent un rendement égal à un ion pour $9 \cdot 10^4$ atomes incidents, ce qui correspond au meilleur rendement expérimentalement observé. Dans les mêmes conditions que plus haut, un rapport signal/bruit de 1 serait obtenu en intégrant 10 secondes par pas de mesure pour un jet de $5,7 \cdot 10^4$ atomes par seconde.

3) Limite de sensibilité de la détection de la fluorescence

Nous avons cherché à comparer la sensibilité de la méthode de détection "électrique" avec celle de la détection de la fluorescence sur notre jet atomique. Pour cela, nous avons enregistré le signal de fluorescence détecté par le photomultiplicateur en fonction de l'intensité du jet d'atomes neutres. L'expérience a été réalisée sur le groupe de composantes hyperfines de la raie D_2 issues du

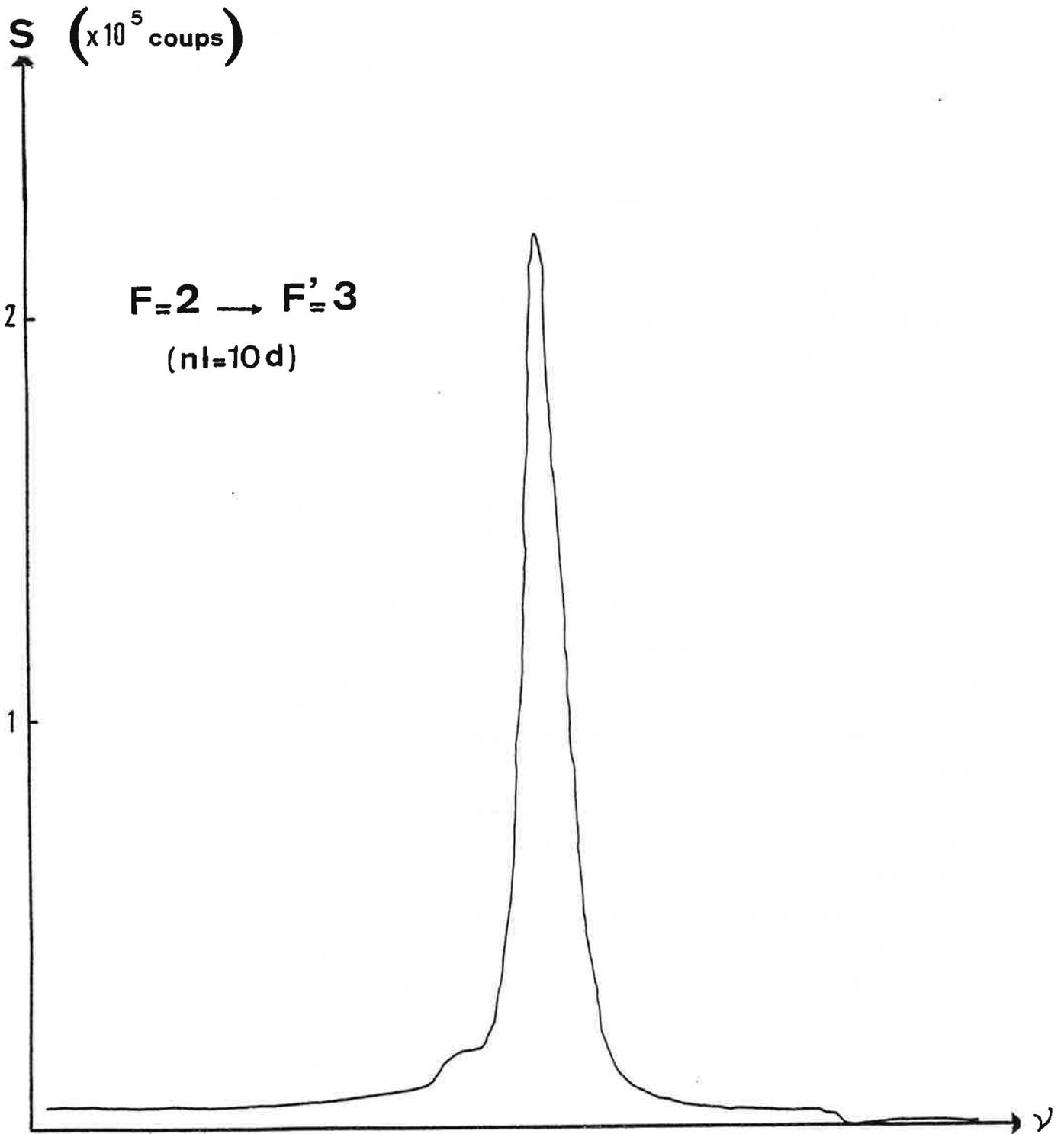


Figure 71

Enregistrement obtenu avec un jet atomique incident intense ($2 \cdot 10^{10}$ atomes/s)

sous-niveau fondamental $F=2$. La figure 72 montre l'évolution de ces composantes en fonction du nombre d'atomes neutres éclairés colinéairement par le laser monomode fonctionnant à basse puissance ($P_{\text{laser}} \sim 0,2$ milliwatt) pour minimiser les effets du pompage hyperfin.

Les caractéristiques des spectres reproduits sont résumées dans ce tableau :

Spectre	Intensité du jet (atomes neutres/s)	Puissance laser (mW)	Signal de fluorescence (Ampère)	Bruit (Ampère)	Signal bruit
I	$8,9 \cdot 10^{10}$	0,2	$1,65 \cdot 10^{-8}$		
II	$5,2 \cdot 10^9$	0,2	$1,23 \cdot 10^{-8}$		
III	$4,2 \cdot 10^8$	0,2	$7 \cdot 10^{-11}$		
IV	$1,4 \cdot 10^8$	0,2	$1,9 \cdot 10^{-11}$		
V	$5,8 \cdot 10^7$	a) 0,2	$9 \cdot 10^{-12}$	$\pm 1,5 \cdot 10^{-12}$	6
		b) 1	$5 \cdot 10^{-11}$	$\pm 3,4 \cdot 10^{-12}$	15
		c) 5	$1,26 \cdot 10^{-10}$	$\pm 9 \cdot 10^{-12}$	14

Le spectre V a été obtenu pour environ $5,8 \cdot 10^7$ atomes neutres par seconde. Le rapport signal sur bruit est de l'ordre de 6 pour la même puissance laser (0,2 mW) que dans les enregistrements précédents. La limite de sensibilité est donc de l'ordre de 10^7 atomes par seconde. On pourrait cependant diminuer le bruit sur les enregistrements en éliminant mieux la lumière parasite, par exemple en utilisant un filtrage spatial sur le faisceau laser incident pour avoir un mode plus propre. Enfin, pour comparer de façon plus équitable, il faut considérer les enregistrements obtenus en fluorescence à forte puissance laser sur la composante $F=2 \rightarrow F'=3$ (cas V.b,c). Le rapport signal/bruit était alors de 15 dans ce cas. La limite de sensibilité s'abaisse à $4 \cdot 10^6$ atomes par seconde dans ce cas.

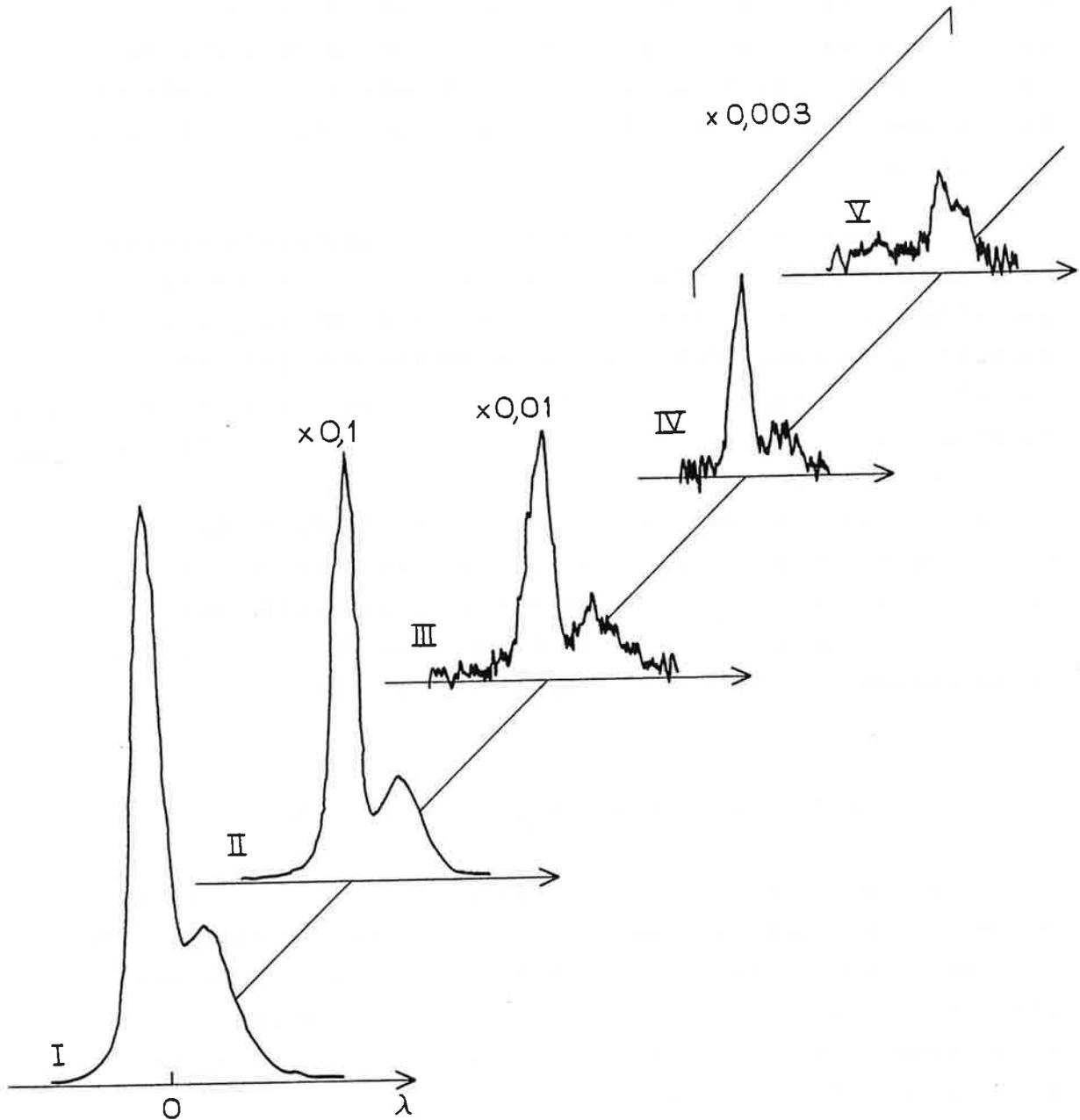


Figure 72

Signaux de fluorescence obtenus sur le groupe de composantes hyperfines $F=2 \rightarrow F'=1,2,3$ de la raie D_2 , pour des intensités de jet atomique décroissantes ; les signaux doivent être multipliés par les facteurs correspondants pour être comparés. Les chiffres romains correspondent aux notations du texte.

4) Conclusion

On peut conclure, à partir des expériences qui viennent d'être rapportées, que la méthode de détection des résonances optiques par ionisation des atomes excités dans un champ électrique statique présente une sensibilité qui la rend concurrentielle vis à vis de la détection de la fluorescence.

Il faut signaler cependant que la meilleure sensibilité enregistrée en détectant la fluorescence a été obtenue par l'équipe de recherche dirigée par E.W. Otten, de l'Université de Mayence (RFA) qui a effectué des mesures "en ligne" sur des isotopes instables de Barium produits en faibles quantités sur le synchrocyclotron du CERN [6]. Ils ont obtenu une sensibilité ultime de 10^5 à quelques 10^4 atomes par seconde pour les isotopes pairs du Barium. Les mesures ont été réalisées, il est vrai, sur la transition de résonance $^1S_0 \rightarrow ^1P_1$ du BaI qui est certainement l'une des transitions les plus favorables du point de vue de la sensibilité en spectroscopie colinéaire.

F. ESTIMATION DU RENDEMENT DE LA METHODE

On va tenter à présent d'évaluer le nombre d'ions collectés par unité de temps en fonction du nombre d'atomes neutres présents dans le jet incident. Le rapport de ces deux quantités nous permettra de définir le rendement ρ de la méthode de détection étudiée dans ce chapitre. L'inverse de ce rendement, ρ^{-1} , permet d'estimer la limite de sensibilité de la méthode pourvu que l'on connaisse aussi le fond et le bruit associés à la détection considérée.

Pour faire ce calcul, nous examinerons successivement les deux étages de l'excitation lumineuse qui porte d'abord les atomes de leur état fondamental $3s$ au premier niveau excités $3p$, puis de ce niveau excité à l'un des niveaux de

Rydberg $10d$ ou $11d$ accessibles à l'aide du rayonnement laser multimode.

On suppose que tous les atomes excités par la lumière sont ionisés par le champ électrique produit à l'intérieur du condensateur. On tiendra compte aussi du facteur de transmission de la grille placée sur l'une des plaques du condensateur, grille que les ions doivent traverser avant d'atteindre la cathode du multiplicateur d'électrons secondaires. Il faudra tenir compte enfin de la transmission de la fente placée sur le trajet du jet d'atomes excités, à l'entrée du champ électrique.

On effectuera le calcul en se plaçant dans la situation expérimentale la plus favorable, c'est-à-dire que le laser monomode qui excite le premier étage est supposé accordé sur la transition hyperfine $F=2$ ($^2S_{1/2}$) \rightarrow $F'=3$ ($^2P_{3/2}$) de la raie D_2 à 5890 \AA qui ne subit pas de pompage optique hyperfin.

1) Rendement du premier étage de l'excitation

La fréquence du laser monomode étant accordée sur une transition qui n'est pas soumise au pompage hyperfin, il est possible en utilisant un faisceau lumineux d'intensité suffisamment élevée, de transférer dans le niveau excité la moitié de la population du niveau hyperfin fondamental.

Soit N_0 le nombre d'atomes issus de la chambre de neutralisation par unité de temps. Les deux niveaux hyperfins $F=1$ et $F=2$ de l'état fondamental sont peuplés dans le rapport de leurs poids statistiques respectifs $\frac{3}{8}$ et $\frac{5}{8}$.

La transition $F=2$ ($^2S_{1/2}$) \rightarrow $F'=3$ ($^2P_{3/2}$) est aisément saturée avec la puissance lumineuse disponible à la sortie du laser. On a en effet montré au chapitre IV que la saturation optique ($\alpha=1$) débute pour une puissance lumineuse du laser colinéaire voisine de 5 mW . Les enregistre-

ments pour cette raie ont été généralement réalisés avec une puissance laser de l'ordre de 30 mW, ce qui correspond à un paramètre de saturation α de l'ordre de 6,3.

Dans un système à deux niveaux, la population du niveau excité en fonction du paramètre de saturation α est donnée par (cf. IV.D.5) :

$$N^{\text{exc}}(\omega) = \frac{N^0(\omega)}{2} \frac{\alpha \gamma^2 / 4}{(\omega - \omega_0)^2 + (\alpha + 1) \frac{\gamma^2}{4}}$$

où $N^0(\omega)$ est le nombre total d'atomes présents dans l'état fondamental à l'instant initial, $\frac{\omega_0}{2\pi}$ la fréquence de résonance de ces atomes, $\frac{\omega}{2\pi}$ la fréquence de l'onde laser excitatrice, et γ la largeur naturelle de la transition $3s \rightarrow 3p$ ($\gamma = 10$ MHz).

La largeur Doppler longitudinale du jet atomique est égale à

$$\Delta \nu_D = \frac{\Delta \omega_D}{2\pi} = 28 \text{ MHz}$$

d'après les résultats du chapitre IV.D.

Les atomes du jet, au nombre de N_0 , susceptibles d'être excités par le laser colinéaire au jet sont donc répartis dans une bande spectrale large de $\Delta \omega_D$. On a donc : $N^0(\omega) = \frac{N_0}{\Delta \omega_D}$ et la population du niveau excité $3p$ en régime stationnaire, est donnée par :

$$\begin{aligned} N^{\text{exc}} &= \int_{\frac{\Delta \omega_D}{2} - \frac{\Delta \omega_D}{2}}^{\frac{\Delta \omega_D}{2} + \frac{\Delta \omega_D}{2}} N^{\text{exc}}(\omega) d\omega \\ &= \int_{\frac{\Delta \omega_D}{2} - \frac{\Delta \omega_D}{2}}^{\frac{\Delta \omega_D}{2} + \frac{\Delta \omega_D}{2}} \frac{N_0}{2\Delta \omega_D} \frac{\alpha \gamma^2}{(\omega - \omega_0)^2 + (\alpha + 1) \frac{\gamma^2}{4}} d\omega \end{aligned} \quad (9)$$

Après intégration, on trouve finalement que le pourcentage d'atomes excités est :

$$\frac{N^{\text{exc}}}{N_0} = 0,33 \quad (10)$$

Après une interaction de durée T très longue devant la durée de vie τ du niveau excité $3p$ (condition pour que le régime stationnaire puisse s'établir), le nombre d'atomes présents dans l'état excité $3p$ est égal à :

$$N_0 \times \frac{5}{8} \times 0,33 . \quad (11)$$

La condition précédente est bien vérifiée dans la réalité. En effet, la durée de vie τ du niveau $3p$ est de 16 ns et le trajet parcouru par les atomes avant d'atteindre le multipassage est de plusieurs dizaines de centimètres. La vitesse des atomes étant égale à 200 000 m/s, la durée de l'interaction T est donc de plusieurs microsecondes ; on a donc bien : $T \gg \tau$.

2) Rendement du deuxième étage de l'excitation

Cette excitation est réalisée par le laser multimode émettant sur les longueurs d'onde $\lambda = 4276 \text{ \AA}$ pour exciter les atomes à partir du niveau $3p$ vers le niveau $10d$ ou $\lambda = 4241 \text{ \AA}$ pour les exciter vers le niveau $11d$.

La puissance lumineuse, mesurée à la sortie de ce laser, peut atteindre 160 mW à $\lambda \sim 4276 \text{ \AA}$ et 120 mW à $\lambda = 4241 \text{ \AA}$. Ces valeurs correspondent aux intensités maximales mesurées avec un colorant neuf ; la dégradation rapide de ce dernier diminue notablement les performances du laser au bout de quelques heures de fonctionnement. Pour cette raison, et compte tenu des pertes au niveau des réflexions sur l'optique d'entrée dans l'enceinte, nous considérerons par la suite que la puissance lumineuse servant effectivement à exciter les atomes est plutôt de l'ordre de 60 mW.

La largeur spectrale de la raie d'émission du laser multimode est de l'ordre de $0,3 \text{ cm}^{-1}$ (10 GHz). Le balayage angulaire de la fréquence d'absorption des atomes, réalisé à l'intérieur du passage multiple de la lumière, permet de couvrir une étendue spectrale de l'ordre de $\pm 5 \text{ GHz}$ (pour une incidence moyenne de l'ordre de 10^{-2} radian). Ce balayage

permet de recouvrir la largeur Döppler du jet atomique qui est voisine de 2,5 GHz (ouverture angulaire de l'ordre de 5.10^{-3} radian).

a) Excitation en bande large

Nous allons d'abord calculer le rendement du deuxième étage de l'excitation lumineuse en supposant que le rayonnement laser a une distribution d'énergie uniforme sur une large bande spectrale.

La densité spectrale d'énergie $\rho(\nu)$ est donnée par :

$$\rho(\nu) = \frac{P}{S.c.\Delta\nu} = 8.10^{-16} \text{ J.s.m}^{-3} \quad (12)$$

où $P = 60$ mW est la puissance lumineuse du laser, répartie sur une section de faisceau $S = (5 \text{ mm})^2$, et sur une largeur spectrale $\Delta\nu = 10$ GHz.

Le nombre d'atomes excités par un rayonnement bande large de densité spectrale $\rho(\nu)$, pendant une durée d'interaction T est :

$$N^{\text{exc}} = N_o . B_{pd} . \rho(\nu) . T \quad (13)$$

B_{pd} est le coefficient d'Einstein habituel et $B_{pd} . \rho(\nu)$ la probabilité d'absorption du rayonnement par unité de temps.

La probabilité d'émission spontanée du niveau 10d vers le niveau 3p est égale à :

$$A_{10d \rightarrow 3p} = 4,62.10^{-5} \text{ s}^{-1}$$

Elle est reliée au coefficient d'Einstein B_{pd} par la relation :

$$A_{dp} = B_{pd} \frac{g_p}{g_d} \frac{8\pi h}{\lambda^3} \quad (14)$$

g_p et g_d étant les degrés de dégénérescence des niveaux 3p et 10d.

On en déduit alors le nombre d'atomes excités dans le niveau de Rydberg $10d$ par le rayonnement large bande, à chaque traversée du faisceau laser multimode :

$$N^{\text{exc}} = N_0 \cdot \frac{5}{3} \cdot A_{\text{dp}} \cdot \frac{\lambda^3}{8\pi h} \cdot \rho(\nu) \cdot T \quad (15)$$

La durée de l'interaction T est égale au temps de passage des atomes de vitesse $v = 2.10^5 \text{ m.s}^{-1}$ à travers le faisceau laser de diamètre $D = 5 \text{ mm}$ au niveau du jet.

Le nombre d'interactions n entre le jet atomique et le faisceau laser multimode, à l'intérieur du dispositif de multiples passages, est égal au double du nombre de taches de réflexions comptées sur chaque miroir. On dénombre en moyenne 20 réflexions sur chaque miroir. Si, de plus, on tient compte du fait que le faisceau lumineux revient sur lui-même, on estime alors à environ 80 le nombre d'interactions entre le jet atomique et le faisceau lumineux.

Il faut cependant tenir compte du fait que le coefficient de réflexion R des miroirs étant inférieur à 1 ($R = 98,5 \%$), l'intensité lumineuse du faisceau est atténuée après chaque réflexion. La durée d'interaction effective T_{eff} peut être alors calculée par :

$$T_{\text{eff}} = \frac{1-R^{81}}{1-R} \frac{D}{v} \sim 47 \frac{D}{v} \quad (16)$$

Le pourcentage d'atomes excités dans le niveau de Rydberg est alors égal à :

$$\frac{N^{\text{exc}}}{N_0} = 3,40.10^{-3} \quad (17)$$

b) Excitation monomode

On considère cette fois que les atomes sont éclairés par un rayonnement laser monochromatique à chaque passage à travers le faisceau laser. Le système atomique comporte deux niveaux non dégénérés : $3p$ et $10d$ (ou $11d$).

L'ensemble des atomes est décrit par une matrice densité $\sigma(t)$. Les éléments diagonaux σ_p et σ_d représentent les populations des niveaux $3p$ et $10d$ (ou $11d$). ; les éléments non diagonaux $\sigma_{pd} = \sigma_{dp}^*$ représentent les cohérences. Comme $\omega \sim \omega_0$, on peut se placer dans l'approximation du champ tournant et, en posant $\rho_{pd} = \rho_{pd} e^{-i\omega t}$, 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) :

$$\left\{ \begin{array}{l} \dot{\sigma}_d = -\gamma\sigma_d - i \frac{\Omega}{2} (\rho_{dp} - \rho_{pd}) \\ \dot{\sigma}_p = \gamma\sigma_d + i \frac{\Omega}{2} (\rho_{dp} - \rho_{pd}) \\ \dot{\rho}_{dp} = -\frac{\gamma}{2}\rho_{dp} + i(\omega - \omega_0)\rho_{dp} - i \frac{\Omega}{2} (\sigma_d - \sigma_p) \\ \dot{\rho}_{pd} = \dot{\rho}_{dp}^* \end{array} \right. \quad (18)$$

Ω étant la fréquence de Rabi définie comme au chapitre IV. On s'intéresse aux atomes situés dans la zone d'interaction avec la lumière. Pour passer à un système d'équations ne dépendant plus du temps, on rajoute dans le système d'équations différentielles précédent des termes pour prendre en compte les atomes du jet qui rentrent dans la zone d'interaction et des termes pour tenir compte du fait que les atomes quittent la zone éclairée au bout d'un temps :

$$T = \frac{D}{v} = \frac{1}{\Gamma} \quad (\text{termes de relaxation})$$

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

$$\sigma_p(0) \cdot \Gamma = N^0(\omega) \cdot \Gamma \quad \text{atomes dans l'état } 3p$$

On prend un modèle pour lequel les atomes restent éclairés en moyenne un temps $T = \frac{1}{\Gamma}$ 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 :

$$\left\{ \begin{array}{l} \dot{\sigma}_d = -\gamma\sigma_d - \Gamma\sigma_d - i\frac{\Omega}{2}(\rho_{dp} - \rho_{pd}) \\ \dot{\sigma}_p = \gamma\sigma_d - \Gamma[\sigma_p - \sigma_p(o)] + i\frac{\Omega}{2}(\rho_{dp} - \rho_{pd}) \\ \dot{\rho}_{dp} = -\frac{\gamma}{2}\rho_{dp} - \Gamma\rho_{dp} + i(\omega - \omega_o)\rho_{dp} - i\frac{\Omega}{2}(\sigma_d - \sigma_p) \\ \dot{\rho}_{pd} = \dot{\rho}_{dp}^* \end{array} \right. \quad (19)$$

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.

La probabilité par unité de temps $\Gamma = T^{-1} = \frac{v}{D}$ est égale à 40 MHz.

La largeur naturelle de la transition $3p \rightarrow 10d$ est, quant à elle, de l'ordre de 174 KHz. On peut donc négliger γ devant Γ dans le système d'équations précédent.

La résolution du système stationnaire donne :

$$\sigma_d(\omega) = \frac{N_o(\omega)}{2} \frac{\Omega^2}{(\omega - \omega_o)^2 + \Omega^2 + \Gamma^2} \quad (20)$$

La largeur Döppler transversale du jet est égale à :

$$\Delta\nu_T = \frac{\Delta\omega_T}{2\pi} = 2,5 \text{ GHz}$$

Le nombre d'atomes qui absorberont l'énergie du faisceau dans la bande spectrale $d\omega$ est donc égal à :

$$\sigma_d(\omega) \cdot d\omega = \frac{N_o}{4\pi \Delta\nu_T} \frac{\Omega^2}{(\omega - \omega_o)^2 + \Omega^2 + \Gamma^2} d\omega \quad (21)$$

où N_o est le nombre total d'atomes présents dans l'état $3p$ par unité de temps.

On en déduit alors que le pourcentage d'atomes excités dans le niveau supérieur sera donné par :

$$\frac{N_{exc}}{N_o} = \frac{1}{N_o} \int_{-\Delta\omega_T/2}^{+\Delta\omega_T/2} \sigma(\omega) \cdot d\omega \sim \frac{1}{4\pi\Delta\nu_T} \int_{-\infty}^{+\infty} \frac{\Omega^2}{(\omega - \omega_o)^2 + \Omega^2 + \Gamma^2} d\omega \quad (22)$$

Donc :

$$\frac{N^{\text{exc}}}{N_0} = \frac{\Omega^2}{4\Delta\nu\sqrt{\Omega^2 + \Gamma^2}} \quad (23)$$

La fréquence de Rabi Ω de la transition peut être exprimée simplement en fonction de la probabilité d'émission spontanée entre les états $10d$ et $3p$: $A_{10p \rightarrow 3p}$, et du flux lumineux apporté par le laser (voir chapitre IV). On trouve ainsi :

$$\Omega^2 = \frac{\lambda^2}{2\pi h\nu} A_{dp} \left(\frac{P}{S} \right) \quad (24)$$

Dans nos conditions expérimentales, on a :

$$\begin{aligned} P &= 60 \text{ mW}, \\ S &= (5 \cdot 10^{-3})^2 \text{ m}^2, \\ A_{10d \rightarrow 3p} &= 4,62 \cdot 10^{-5} \text{ s}^{-1} \end{aligned}$$

On en déduit que : $\Omega = 8,33 \text{ MHz}$.

Pour une traversée du faisceau laser par le jet atomique, on trouve ainsi que le pourcentage d'atomes excités dans l'état $10d$ est égal à :

$$\frac{N^{\text{exc}}}{N_0} = 1,7 \cdot 10^{-4}$$

On a calculé auparavant que le nombre de passages effectifs à travers le dispositif de passages multiples est égal à 47. Ces 47 passages correspondent au balayage d'une largeur spectrale de 10 GHz. Or, la largeur Doppler transversale du jet atomique n'est que de 2,5 GHz. Seul $\frac{1}{4}$ de ces passages doit donc être pris en compte dans le cas où l'on considère une excitation monomode, ce qui conduit à multiplier par un facteur 11,75 le nombre d'atomes excités en sortie du passage multiple, soit :

$$\frac{N^{\text{exc}}}{N_0} = 2 \cdot 10^{-3} \quad (25)$$

c) Conclusion

Si on ne tient pas compte de la dégénérescence des niveaux 3p et 10d dans le calcul exposé au point a), on aboutirait effectivement au résultat :

$$\frac{N^{\text{exc}}}{N_0} = \frac{3}{5} \cdot 3,40 \cdot 10^{-3} = 2,04 \cdot 10^{-3}$$

qui est identique au pourcentage d'atomes excités donné par le calcul exposé en b).

3) Rendement total de la méthode

L'efficacité de la méthode de détection est aussi grevée par les pertes qui se produisent à la traversée de la fente diaphragmant l'entrée du condensateur et de la grille placée en regard de la cathode du multiplicateur d'électrons.

La transmission de la fente est de l'ordre de 0,5 et une évaluation optimiste de la transmission de la grille basée sur les caractéristiques géométriques de celle-ci donne $(0,75)^2$.

Il faut tenir compte aussi de la décroissance naturelle de la population du niveau de Rydberg qui diminue l'efficacité de l'excitation à la sortie du passage multiple. La longueur totale du trajet parcouru par les atomes entre l'entrée du dispositif de passages multiples et la zone de détection est égale à :

$$x_1 = 25 \text{ cm, ce qui correspond à un temps de vol :}$$

$$t_1 = 1,25 \cdot 10^{-6} \text{ s.}$$

Depuis la sortie du dispositif, ils parcourent une longueur

$$x_2 = 14 \text{ cm en un temps } t_2 = 7 \cdot 10^{-7} \text{ s.}$$

La durée de vie du niveau 10d est $\tau = 914 \cdot 10^{-9} \text{ s.}$

Le pourcentage d'atomes qui se désexcitent par émission spontanée avant d'atteindre le champ électrique est, en moyenne :

$$\langle e^{-\frac{t}{\tau}} \rangle = \frac{1}{t_1 - t_2} \int_{t_2}^{t_1} e^{-\frac{t}{\tau}} dt \quad (26)$$

Soit :

$$\langle e^{-\frac{t}{\tau}} \rangle = \frac{e^{-\frac{t_2}{\tau}} - e^{-\frac{t_1}{\tau}}}{t_1 - t_2} \cdot \tau = 0,35$$

On aboutit alors à un rendement global théorique voisin de

$$\rho = \frac{\text{signal d'ions/seconde}}{\text{nombre d'atomes neutres incidents/seconde}} \\ = \frac{5}{8} \times 0,33 \times 2 \cdot 10^{-3} \times 0,35 \times \frac{1}{2} \times (0,75)^2 = 4,06 \cdot 10^{-5} \quad (27)$$

On peut exprimer le même résultat d'une façon différente en disant que le nombre d'atomes neutres nécessaire pour produire un signal égal à un ion par seconde est égal à environ 25 000 atomes/seconde.

Ce calcul permet de retrouver globalement l'ordre de grandeur de l'efficacité de cette méthode de détection mais il reste néanmoins assez optimiste puisque le meilleur résultat expérimental obtenu pour le cas considéré est de l'ordre de $\rho = 1,15 \cdot 10^{-5}$, correspondant à la détection d'un ion pour un flux incident de 87 000 atomes par seconde.

L'écart entre le résultat de notre calcul et le résultat expérimental provient sans doute en grande partie d'une surestimation de l'efficacité du deuxième étage de l'excitation optique en raison principalement des difficultés mécaniques de réglage des miroirs du passage multiple de la lumière. Ces difficultés ont été signalées pendant la description du matériel expérimental ; elles résultent en une diminution certaine du paramètre de saturation de la transition $3p \rightarrow 10d$.

G. CONCLUSION

Une méthode de détection non optique des résonances optiques a été mise au point et adaptée aux conditions particulières de la spectroscopie colinéaire sur jet atomique rapide. La limite de sensibilité, dans des conditions expérimentales favorables, est de l'ordre de 10^5 atomes par seconde, ce qui est une limite tout à fait comparable à la meilleure sensibilité obtenue en détectant la fluorescence (quelques 10^4 atomes par seconde) en spectroscopie colinéaire.

La sensibilité de cette technique de détection peut être encore améliorée en augmentant surtout l'efficacité du deuxième étage de l'excitation optique. On peut tout d'abord chercher à augmenter la puissance lumineuse du laser multimode en utilisant un laser à colorant accordable pompé de façon synchrone par un laser ionique fonctionnant en modes bloqués, ce qui permettrait de remédier en partie à la faiblesse des probabilités de transition vers les niveaux de Rydberg. On peut aussi tenter de simplifier les réglages du dispositif de passages multiples de la lumière en remplaçant les deux miroirs plans par un dispositif équivalent constitué de deux prismes droits identiques à ceux qui ont été décrits par Gough et al. [64].

Nous projetons 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 de l'isotope de gaz rare. Si le niveau supérieur de la transition optique étudiée est un niveau très excité, la méthode de détection par ionisation dans un champ électrique statique peut alors être envisagée favorablement.

Chapitre VIII

COLLISIONS MULTIPLES DANS LA CELLULE
D'ECHANGE DE CHARGES

Dans le Chapitre II, consacré au rappel des principes de la spectroscopie colinéaire, on a vu que le processus d'échange de charges qui se produit à l'intérieur de la cellule de neutralisation permet d'étendre cette technique, développée initialement sur des jets d'ions rapides, aux jets d'atomes neutres. Nous nous intéresserons ici de façon plus particulière au phénomène d'échange de charges lui-même.

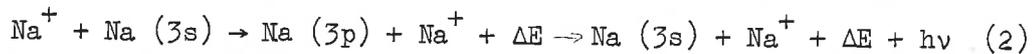
Le calcul de la section efficace d'échange de charges par collisions avait montré que, dans nos conditions expérimentales de vitesse du faisceau d'ions et de pression de la vapeur cible, le processus d'échange de charge résonnant est prépondérant par rapport au processus non résonnant.

Dans les expériences qui vont être décrites, nous avons d'abord cherché à évaluer quantitativement le rapport des sections efficaces des deux processus lors d'un échange de charge mettant en jeu une seule

collision entre un ion rapide et un atome neutre de la vapeur. Nous nous sommes ensuite délibérément écartés des conditions expérimentales réalisées pour les mesures précédentes afin d'observer l'effet de l'augmentation de la pression de vapeur à l'intérieur de la cellule de neutralisation sur l'importance relative des deux processus d'échange de charges.

A - Processus d'échange de charges à une collision.

Rappelons que la neutralisation d'un ion du jet rapide incident par un atome de la vapeur cible peut se faire suivant deux processus qui ont lieu de façon concurrente :



Le processus (1) est résonnant ; il correspond à une collision élastique. Après neutralisation suivant le deuxième processus, l'ion neutralisé se retrouve dans l'état excité $3p$. Ce surplus d'énergie ($\approx 2,1$ eV) est prélevé sur l'énergie cinétique de l'ion incident. La raie de résonance principale est alors accompagnée d'une raie satellite. Celle-ci apparaît du côté de la raie correspondant à l'entrée en résonance avec le laser d'atomes de vitesse inférieure à ceux de la raie principale. Pour un jet d'ions d'énergie égale à 5 keV, les deux raies sont distantes de 71 MHz environ. Quant au rapport de leurs intensités respectives, il est égal au rapport des sections efficaces des deux processus.

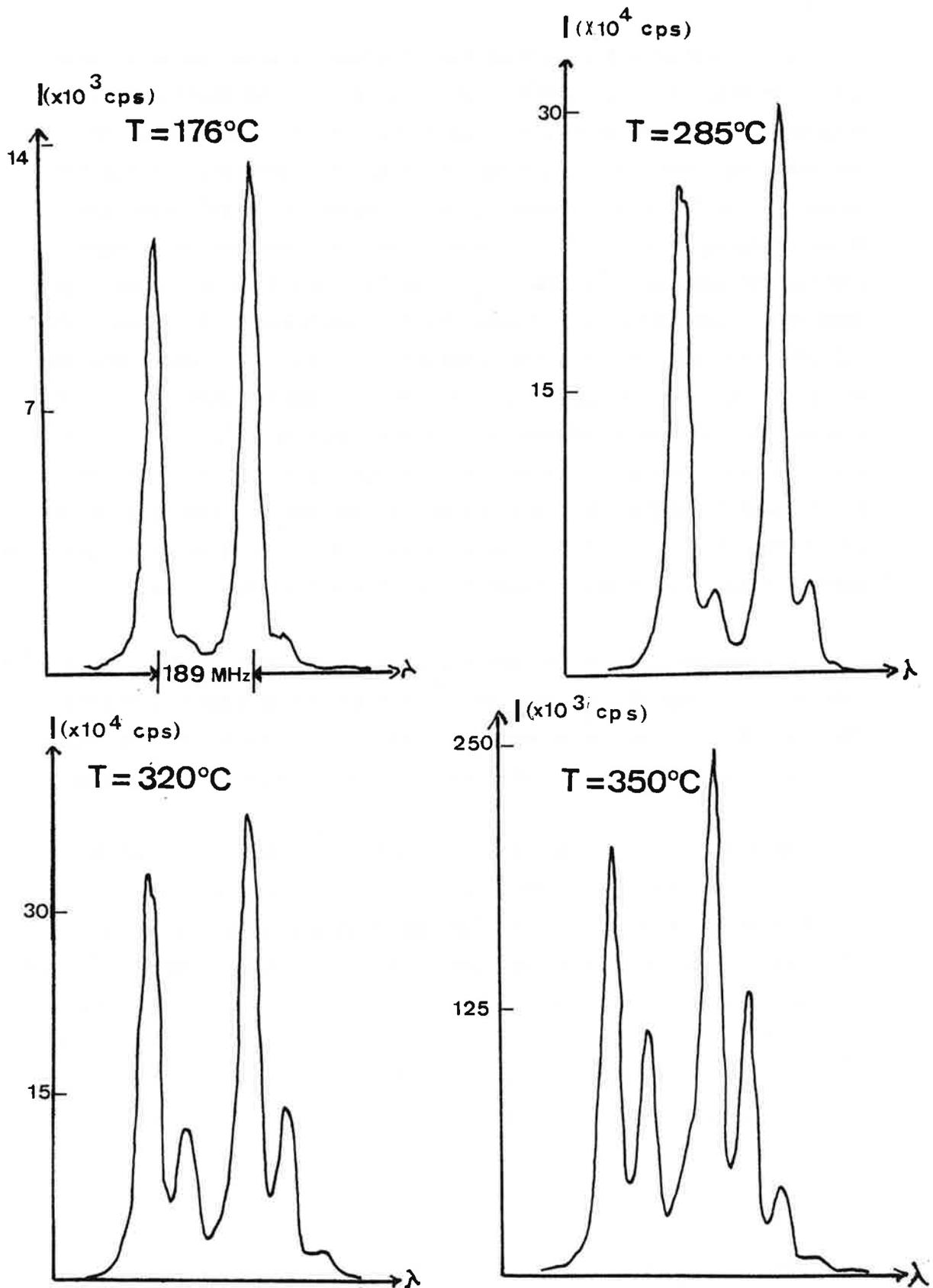


Figure 73 : Evolution d'un groupe de composantes ($F=2 \rightarrow F'=1,2$) de la raie D_1 en fonction de la température de la cellule de neutralisation.

Il faut cependant remarquer que l'intensité relative de la raie satellite croît avec la température de la cellule de neutralisation, donc avec la densité atomique de la vapeur cible (Figure 73). Ce phénomène ne correspond pas à une variation des probabilités des processus (1) et (2) avec la densité de la vapeur et ne peut pas, non plus, s'expliquer à partir des deux processus d'échange de charges décrits précédemment. En fait, lorsque la densité de la vapeur cible augmente, l'ion neutralisé suivant la voie résonnante (1) a une probabilité croissante de subir une deuxième collision. Si cette deuxième collision est inélastique, l'un des deux partenaires sera excité dans l'état $3p$, l'énergie nécessaire à cette excitation (2,16 eV) étant prélevée sur l'énergie cinétique de l'atome rapide qui contribuera alors, dans le signal de fluorescence, à rehausser l'intensité de la raie satellite. Ce phénomène sera expliqué de façon plus détaillée dans le paragraphe suivant consacré aux collisions multiples.

La remarque précédente justifie le fait que nous ayons cherché à déterminer le rapport des sections efficaces des échanges de charge résonnant et non résonnant pour les densités de vapeur les plus faibles pour lesquelles la neutralisation du jet d'ions reste mesurable.

Quelques points de mesures, correspondant à des pressions de vapeur inférieures à 10^{-3} Torr, ont été reportés sur la Figure 74 ; ils illustrent la variation de l'intensité relative du pic satellite par rapport à la raie principale en fonction du rapport pression/température de la vapeur de sodium cible. En supposant que cette dernière suit la loi des gaz parfaits, on peut considérer que la courbe précédente est tracée en fonction de la densité de la vapeur. On voit ainsi que l'intensité du pic satellite varie linéairement sur le court intervalle de température représenté (de 175°C à 285°C). L'extrapolation de la courbe vers une densité de vapeur nulle donne alors la valeur suivante pour le rapport des sections efficaces du processus non résonnant et du processus résonnant :

$$\rho = \frac{\sigma_{n.r.}}{\sigma_r} \approx 0.055 \pm 0.005$$

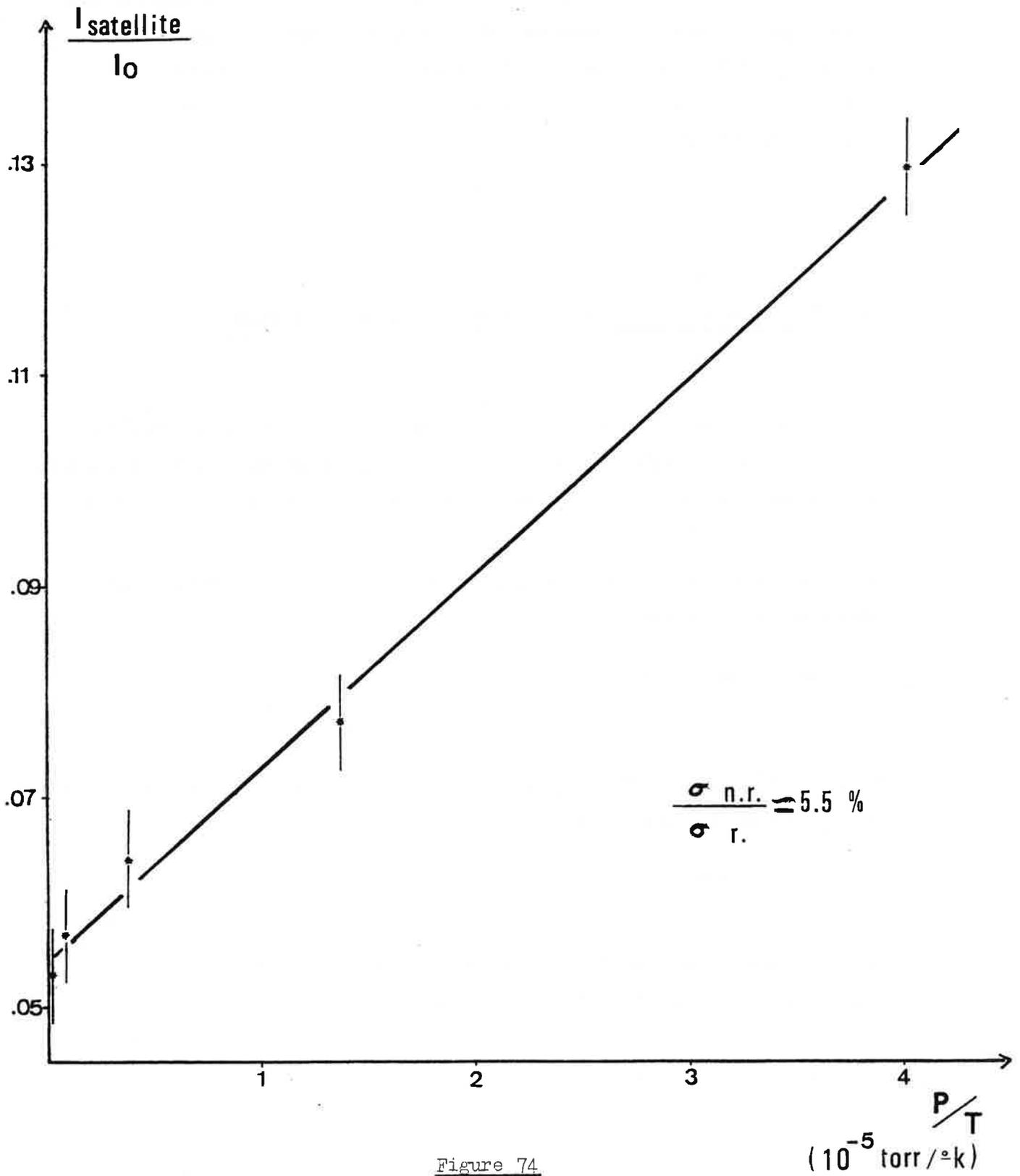


Figure 74

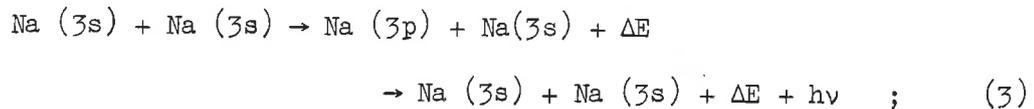
Variation de l'intensité relative de la raie satellite en fonction de la densité de la vapeur de Na ($n \sim P/T$).

Cette valeur expérimentale peut être comparée à la valeur théorique donnée par le modèle semi-empirique de Rapp et Francis [17]. Ce modèle prévoit, dans le cas des collisions $\text{Na}^+ - \text{Na}$, survenant à une énergie relative de 5 keV, un rapport ρ environ 3 fois plus grand (voir Chapitre II-C).

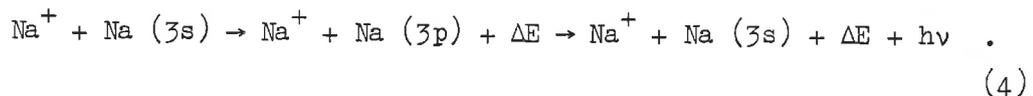
B - Processus d'échange de charge à plusieurs collisions.

A des pressions de vapeur supérieures à 10^{-3} Torr, la probabilité de collisions multiples augmente à l'intérieur de la cellule d'échange de charges. Le mécanisme de ces collisions multiples peut suivre deux schémas différents :

- Il peut d'abord s'agir d'une collision entre l'atome neutralisé et un atome de la vapeur :



- ou d'une collision sans échange de charge mais se produisant avec excitation de l'atome cible



Les deux processus résultent en un ralentissement de la particule rapide après la collision et correspondent donc au même décalage Doppler du point de vue de l'excitation lumineuse. L'influence de ces collisions multiples est visible sur les enregistrements présentés en Figure 73. On peut, en effet, en tirer plusieurs remarques :

- A densité de vapeur croissante, l'intensité des raies de fluorescence croît aussi : on enregistre ainsi 13565 coups sur la composante

$F=2 \rightarrow F'=1$ de la raie D_1 pour une température de chauffage de la cellule d'échange de charge égale à 176°C . Le rapport des intensités des composantes principale et satellite est alors égal à $5,4 \cdot 10^{-2}$, égal donc au rapport des sections efficaces des processus (2) et (1). Lorsqu'on augmente la température de chauffage de la cellule d'échange de charge jusqu'à 285°C , le signal de fluorescence augmente et passe à 305398 coups pour la même composante. Cependant, le rapport des composantes principale et parasite passe à $13,4 \cdot 10^{-2}$. Cette augmentation de l'intensité relative des raies satellites est signe que la particule incidente, après un échange de charge résonnant, a une probabilité croissante de subir une deuxième collision, inélastique cette fois, avant de quitter la cellule de neutralisation. Cette deuxième collision se traduit aussi par une perte d'énergie cinétique égale à l'énergie de la transition $3s - 3p$ (2,16 eV). Du point de vue des résonances optiques enregistrées, la neutralisation par l'échange de charge non résonnant et cette seconde collision contribuent ensemble au signal de fluorescence correspondant à la même raie satellite, distante de 72 MHz de la raie principale.

- Augmentant encore la température jusqu'à 320°C , on voit apparaître une deuxième raie satellite, du même côté par rapport à la raie principale, et distante de la première raie satellite du même intervalle spectral (~ 73 MHz). Cette dernière remarque montre que les atomes qui participent au signal de fluorescence dans cette deuxième raie satellite ont subi deux collisions inélastiques après leur neutralisation puisqu'ils correspondent à un décalage d'énergie par rapport à la raie principale égal au double de l'énergie de la transition $3s \rightarrow 3p$. On peut signaler à cet égard que ces différents pics satellites ont été attribués à tort par certains auteurs [2] à des échanges de charge non résonnants, du même type que le processus (2), mais se produisant avec neutralisation de l'ion incident dans des états excités de plus en plus élevés ($3p, 4s, 3d, 4p$, etc.). L'écart en fréquence entre les différents pics observés, rigoureusement constant (~ 71 MHz), infirme complètement cette hypothèse.

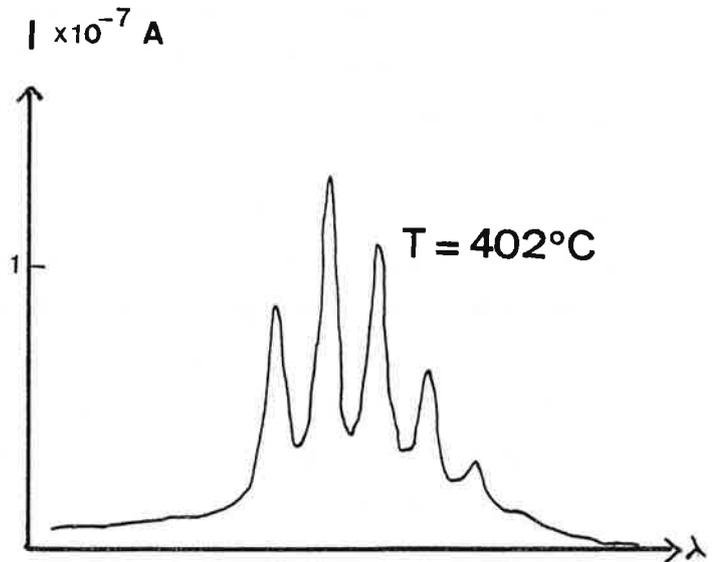
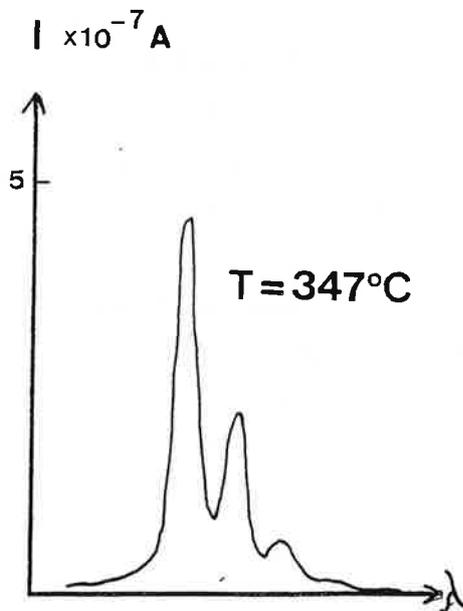
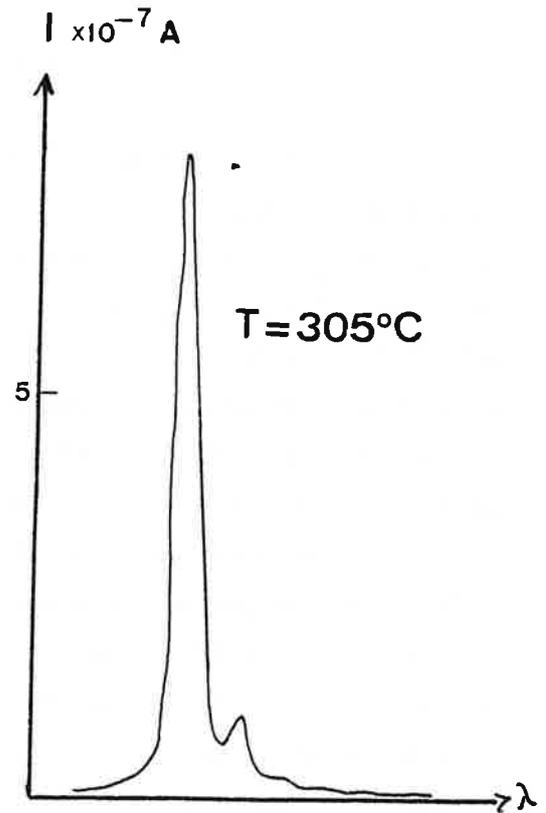
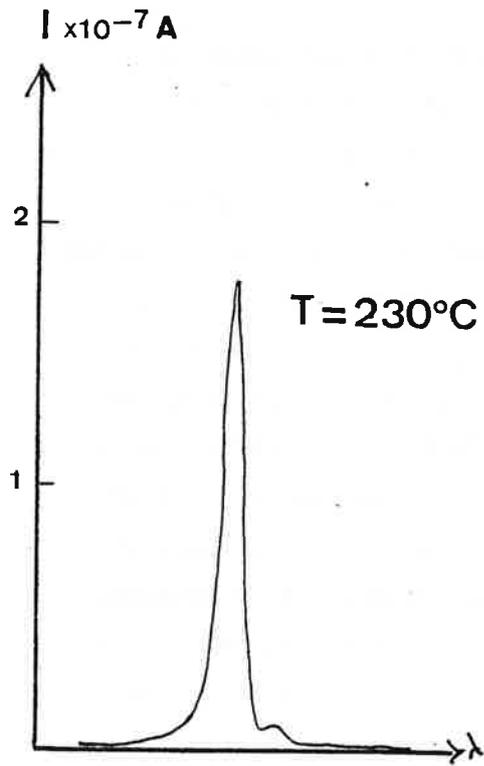


Figure 75

Effet des collisions multiples sur le signal de fluorescence de la
composante $F=2 \rightarrow F'=3$, à température croissante.

- L'hypothèse de collisions multiples est confirmée par le dernier enregistrement présenté en Figure 75 , enregistrement réalisé pour une température de chauffage de 350°C. A cette température on voit apparaître un troisième pic satellite, distant de 70 MHz environ du précédent. L'amplitude des deux autres raies satellites s'est encore renforcée au détriment de la raie principale.

Le phénomène de collisions multiples est sans doute encore plus frappant sur l'enregistrement reproduit en Figure 76. Cet enregistrement a été réalisé à une température de 424°C , sur la composante $F=2 \rightarrow F'=3$ de la raie D_2 . On peut compter jusqu'à 8 pics équidistants sur cet enregistrement, ce qui correspond à sept collisions inélastiques sur le trajet de l'atome neutralisé à l'intérieur de la cellule d'échange de charge.

- La température optimum du chauffage de la cellule de neutralisation semble être voisine de 310°C , ce qui correspond à une pression de vapeur de l'ordre de $5 \cdot 10^{-2}$ Torr . Au voisinage de cette température, en effet, le signal de fluorescence total, obtenu en sommant les contributions de la résonance principale et des résonances satellites, passe par sa valeur maximale dans toutes les expériences réalisées, aussi bien sur la raie D_1 que la raie D_2 . Lorsque l'on augmente la température au-delà de cette valeur optimum, le signal de fluorescence total enregistré décroît, indiquant que le nombre d'atomes excités par unité de temps décroît en raison des collisions multiples qu'il a subi ; ces collisions inélastiques rendent en effet le faisceau de plus en plus divergent, ce qui résulte en une diminution, d'une part, du nombre d'atomes émergeant de la cellule et, d'autre part, du nombre d'atomes du jet éclairés par le faisceau laser.

- On peut remarquer enfin que ces collisions multiples ne produisent pas un élargissement notable des résonances enregistrées, comme on aurait pu le prévoir.

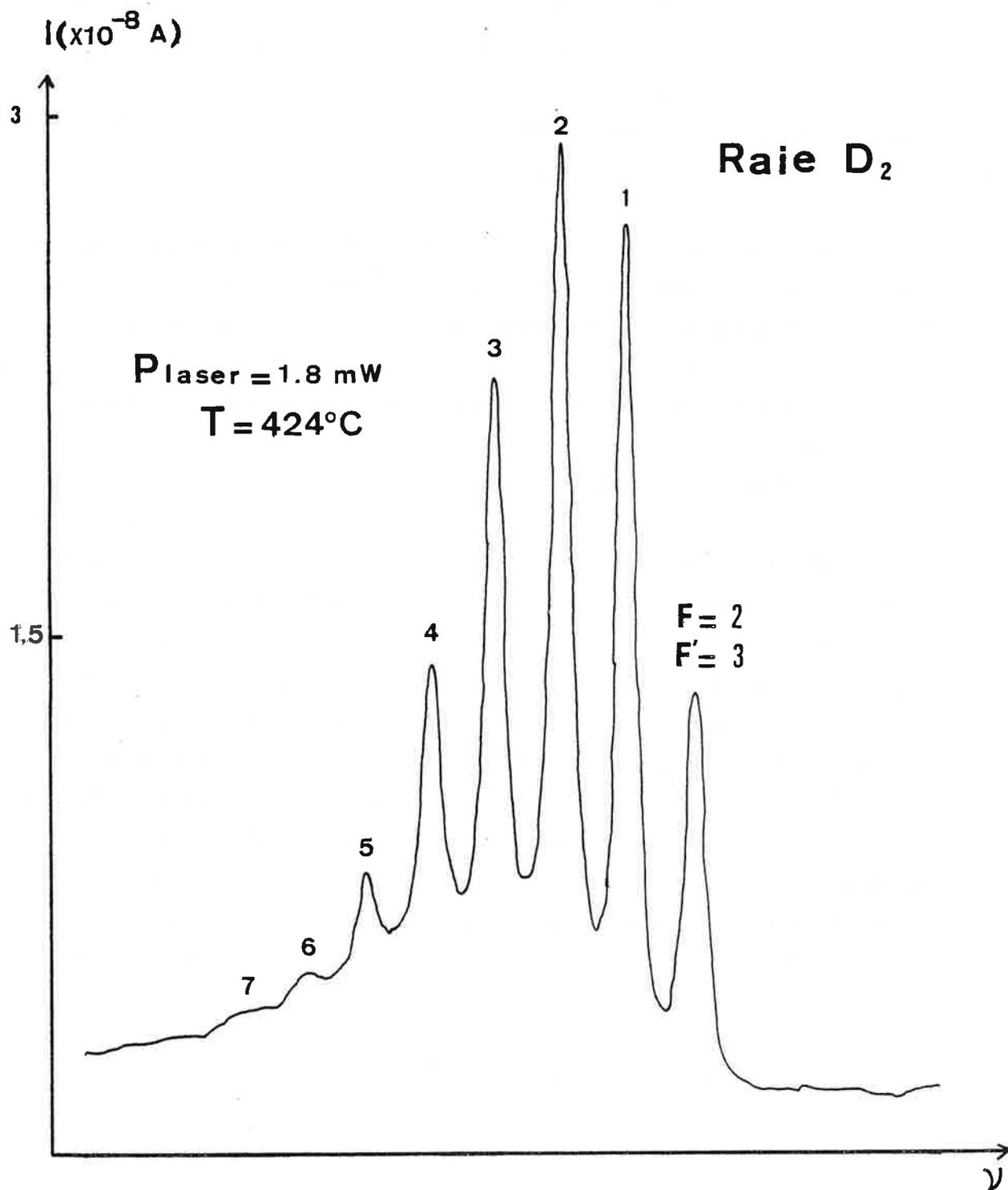


Figure 76

Enregistrement réalisé pour $T = 424^\circ\text{C}$. On observe 7 raies satellites correspondant à 7 collisions successives dans la cellule.

C - Conclusion.

Des expériences supplémentaires sont nécessaires pour tirer des conclusions moins qualitatives. En particulier, une mesure précise de la densité de la vapeur à l'intérieur de la cellule de neutralisation ainsi que de la longueur de la colonne de vapeur traversée par le jet d'ions est nécessaire pour mesurer de façon absolue les sections efficaces de transfert de charge. Une méthode de détermination de la densité de vapeur pourrait consister à mesurer l'absorption d'un faisceau laser accordé sur une fréquence de résonance de la vapeur.

D'autre part, les différentes théories de l'échange de charge [20] prévoient que la probabilité du processus résonnant diminue rapidement avec l'énergie du faisceau d'ions, contrairement à celle du processus non résonnant. Notre expérience fournit la possibilité de vérifier les prévisions théoriques, en mesurant les sections efficaces des deux processus pour des énergies de faisceau d'ions variant entre 1 keV et 50 keV. Au-delà de cette énergie, les raies principale et satellite correspondant aux deux processus ne sont plus résolues, dans le cas de notre jet de Na (la distance spectrale entre elles variant en $1/\sqrt{eU}$, U étant le potentiel d'accélération des ions). Cette expérience n'a pu être réalisée jusqu'à présent, faute d'une alimentation en tension convenable. Néanmoins, elle est prévue dans un proche avenir.

Partie II

SPECTROSCOPIE à HAUTE RESOLUTION
SUR LES TROIS ISOTOPES NATURELS DU POTASSIUM.
EXCITATION PAR UN LASER MODULE
A DES FREQUENCES R.F.

I - INTRODUCTION

Les études systématiques entreprises ces dernières années sur de longues chaînes d'isotopes produits en ligne derrière les accélérateurs ont apporté une foule d'informations pour la compréhension de la structure nucléaire [3,4,65]. Les expériences de spectroscopie laser à haute résolution sur ces chaînes d'isotopes permettent la détermination de paramètres nucléaires importants à travers la mesure des constantes de structure hyperfine, des déplacements isotopiques et des spins nucléaires.

Dans le cas des isotopes d'alcalins, une méthode très sensible, basée sur le pompage optique d'un jet atomique suivi par la sélection magnétique des atomes à travers un champ magnétique inhomogène, a été développée [66]. Cette méthode expérimentale est décrite plus en détail dans la Partie III, consacrée à l'étude en ligne des isotopes du francium. Elle a été appliquée avec succès à l'étude des isotopes du sodium [67], du rubidium [68], du francium [69], du césium [70] et, plus récemment, du potassium [71]. Toutes ces expériences ont été menées en ligne derrière les accélérateurs du C.E.R.N..

A	Spin nucléaire I (Période)	$A_g(4S_{1/2})$ (MHz)	$IS_{D_1}(A/39)$ (MHz)	$a(4P_{1/2})$ (MHz)	$a(4P_{3/2})$	$b(4P_{3/2})$	μ_I/μ_N	39_A (%)
36	2^+ (0,36s)	(+) 241,8(5)						
37	$3/2^+$ (1,23s)	120,1336(4)					0,20293(6)	-2,49(35)
38	3^+ (7,61 mn)	404,369(3)	-127,0(50)					
39	$3/2^+$ (93,26%)	230,8598601(7) 231,0(3)	0	28,85(30) 27,5(4)	6,13(5) 6,0(1)	2,72(12) 2,9(2)	0,39092094(33)	0
40	4^- (0,0117%) (1,28.10 ⁹ années)	-285,731(2)			-7,59(6)	-3,5(5)	-1,296156(9)	4,594(6)
41	$3/2^+$ (6,73%)	127,0069360(10) 126,9(8)	222(9) 228(15) 235,25(75)	15,1(8)	3,40(8)	3,34(24)	0,21457083(24)	-2,2936(14)
42	2^- (12,36h)	-503,550779(12)	480(120) 351,7(20)	-60,6(16)			-1,14094(50)	3,55(100)
43	$3/2^+$ (22,3h)	±96,32(3) 96,3242(10)	459,0(12)					
44	2^- (22,1 mn)	-378,6872(10)	564,3(14)	-44,9(11)				
45	$3/2^+$ (20 mn)	±102,2937(8) 102,295(3)	661,7(16)					
46	2^- (115s)	-465,1(12)	762,8(15)	-55,7(13)				
47	$1/2^+$ (20 mn)	3420,2(30)	857,5(17)	411,9(50)	89,9(23)	0		

Tableau I

Pour ce qui concerne les isotopes du potassium, de nombreuses mesures de structure hyperfine avaient été faites depuis les années 50. On connaissait déjà la structure du fondamental et le moment magnétique nucléaire avec une bonne précision pour les isotopes compris entre ^{36}K et ^{45}K (excepté pour l'isotope ^{44}K). Le spin était même donné avec quelque certitude jusqu'à $A = 48$ [72]. Remesurer toutes ces quantités dans les expériences menées au C.E.R.N. constituait donc, en quelque sorte, un excellent test de l'efficacité et de la fiabilité de la méthode de sélection magnétique. En revanche, les déplacements isotopiques étaient pratiquement tous inconnus et leurs déterminations constituaient presque toutes des mesures inédites. Les principaux résultats obtenus alors sont regroupés dans un tableau récapitulatif (Tableau 1) tiré de [73].

De l'examen du Tableau 1, il ressort qu'avec le dispositif monté au C.E.R.N., il a été impossible de déterminer le déplacement isotopique concernant l'isotope naturel ^{40}K . En effet, dans cette méthode, la détection des résonances optiques était menée non pas sur la lumière de fluorescence, mais sur les atomes du jet atomique qui étaient ionisés, séparés en masse, puis dénombrés. A cause du bruit de fond intense produit par les ions de calcium $^{40}\text{Ca}^+$ présents à l'état naturel dans la source d'ions, l'extraction du signal correspondant à ^{40}K , de plusieurs ordres de grandeur plus faible, n'a pu être réalisée.

D'autre part, l'abondance naturelle de ^{40}K (0,0117%) ne permet pas la mesure de sa structure hyperfine par les techniques habituelles de détection de la fluorescence sur un jet atomique de potassium naturel. En revanche, la structure hyperfine de l'autre isotope naturel stable, ^{41}K , a été déterminée par cette dernière méthode, son abondance naturelle (6,73%) étant suffisante pour assurer un rapport signal sur bruit correct. Il restait donc à mettre au point une expérience spécifique pour mesurer le déplacement isotopique du ^{40}K .

Les mesures de déplacements isotopiques, dans les expériences menées au C.E.R.N., avaient toutes été réalisées en se référant à l'isotope stable le plus abondant ^{39}K (93,26% dans le potassium naturel). La structure hyperfine de la raie D_1 de ^{39}K avait donc été enregistrée soigneusement à plusieurs reprises, ce qui avait permis une détermination très précise des constantes hyperfines. Ces mesures ont montré que pour la constante hyperfine du premier niveau excité $4p\ ^2P_{1/2}$, la valeur qui avait été mesurée $A_{39} = ({}^2P_{1/2}) = 27,5 (0,4)$ était en désaccord significatif avec la seule autre valeur existant dans la littérature $A_{39} ({}^2P_{1/2}) = 28,85 (0,30)$ [78] mesurée par Buck et Rabi en 1957 par une méthode de double résonance. Bien que la valeur mesurée au C.E.R.N. fût totalement cohérente avec l'ensemble des valeurs mesurées pour les autres isotopes, il nous avait alors semblé nécessaire de mesurer de nouveau la structure hyperfine de la raie D_1 de l'isotope ^{39}K en utilisant pour le balayage en fréquence du laser une technique complètement différente de celle qui avait été utilisée au C.E.R.N., ceci [67] afin d'éviter toute erreur de mesure systématique. C'est cette expérience qui va être décrite maintenant.

Nous commencerons par quelques rappels théoriques sur la structure hyperfine et sur les déplacements isotopiques afin de montrer comment leur connaissance permet d'accéder à la détermination de certaines caractéristiques nucléaires telles que : moment dipolaire magnétique, moment quadropolaire et déformation, variation du rayon carré moyen de charge. Nous exposerons ensuite le principe expérimental de la technique qui a été utilisée pour ces mesures effectuées sur un échantillon de potassium naturel ; le dispositif et la procédure expérimentale seront ensuite décrits en détail avant l'exposé des résultats qui ont été obtenus.

Chapitre II

RAPPELS THEORIQUES SUR LES STRUCTURES HYPERFINES
ET LES DEPLACEMENTS ISOTOPIQUES

Les propriétés du noyau sont reflétées dans le spectre atomique à travers les effets, certes faibles mais bien définis, de l'interaction hyperfine. L'étude spectroscopique de cette interaction apporte donc des informations fondamentales sur le spin, les moments, le rayon et la forme des noyaux. Ces quantités se sont avérées d'une importance cruciale dans la mise au point des modèles théoriques nucléaires maintenant bien établis. Dans l'exposé des effets nucléaires hyperfins sur le spectre atomique, nous utiliserons les mêmes notations que [74].

L'interaction électromagnétique entre le noyau et les électrons d'un même atome peut être représentée d'une façon générale par un développement en multipôles d'ordre k :

$$\mathcal{K} = \sum_k T_n^k \otimes T_e^k$$

où T_n et T_e sont des opérateurs tensoriels sphériques de rang k opérant dans les espaces nucléaire et électronique respectivement.

Les valeurs paires de k correspondent aux interactions électriques, les valeurs impaires aux interactions magnétiques. $k=0$ rend

compte de la distribution de la partie sphérique de la charge du noyau. Comme elle n'a pas de dépendance angulaire, elle produit un déplacement identique de tous les niveaux à l'intérieur d'une configuration donnée, par rapport aux positions correspondant à un noyau ponctuel ; c'est l'origine du déplacement isotopique. Le terme $k=1$ tient compte de l'interaction du dipole magnétique μ du noyau avec le champ magnétique créé par les électrons. Le terme $k=2$ décrit l'interaction du moment quadrupolaire électrique Q du noyau avec le champ électrique inhomogène produit par les électrons.

Les deux derniers termes $k=1$ et $k=2$ ont des dépendances angulaires dipolaires et quadrupolaires respectivement et sont responsables de la structure hyperfine. Le moment quadrupolaire Q n'existe que dans les atomes pour lesquels : $I > 1/2$ et $J > 1/2$.

A - Interaction magnétique.

Le hamiltonien de cette interaction magnétique peut s'écrire :

$$\mathcal{H}_m = A \vec{I} \cdot \vec{J} \quad .$$

L'énergie hyperfine de l'état $|J, I, F\rangle$ où F est le nombre quantique caractérisant le moment angulaire total $\vec{F} = \vec{I} + \vec{J}$ est :

$$W_m(J, I, F) = \frac{A}{2} C \quad \text{avec} \quad C = F(F+1) - I(I+1) - J(J+1) \quad .$$

Dans le cas idéal d'un noyau ponctuel : $A = -\mu \frac{H_e}{h^2 I \cdot J}$, H_e étant le champ magnétique produit par les électrons sur le noyau et μ le moment magnétique nucléaire. H_e ne dépend que de la structure électronique, il est le même pour les isotopes d'un élément donné.

Si A et μ peuvent être mesurés séparément pour l'un des isotopes, μ peut être obtenu pour tous les autres isotopes à partir de la mesure de A en remarquant uniquement que :

$$\frac{A_i \cdot I_i}{\mu_i} = \frac{A_j \cdot I_j}{\mu_j} \quad (i \text{ et } j \text{ deux isotopes différents}).$$

Le moment magnétique et le spin nucléaires sont reliés par :

$$\mu = \mu_n g_I \vec{I} .$$

Le calcul de H_e est difficile, en général. Dans le cas des alcalins, lorsque l'électron est un électron s ($L=0$), on montre que

$$H_e = -\frac{8\pi}{3} \mu_0 \Psi_0^2 \quad \text{où } \mu_0 \text{ est le magnéton de Bohr ;}$$

Ψ_0^2 est le carré de la fonction d'onde de l'électron au centre du noyau.

On a alors :

$$A_s = \frac{16\pi}{3I} \mu_0 \mu \Psi_0^2 .$$

B - Anomalie hyperfine.

Les relations établies plus haut pour un noyau ponctuel idéal doivent être corrigées pour décrire la réalité. On pose alors :

$$A = \mu \frac{H_e}{I \cdot J} (1+\delta) (1+\epsilon) \approx \frac{\mu H_e}{I \cdot J} (1+\delta+\epsilon) .$$

La première correction δ est due à la distribution finie des charges électriques du noyau qui modifie la fonction d'onde électronique (effet Breit-Rosenthal). La seconde correction, ϵ , tient compte de la distribution finie des moments magnétiques (effet Bohr-Weisskopf). La mesure directe de $\delta+\epsilon$ n'est malheureusement pas possible ; seule

sa variation $\Delta_{ij} = (\delta_i - \delta_j) + (\epsilon_i - \epsilon_j)$ est mesurable quand A et μ peuvent être mesurés séparément pour deux isotopes i et j avec une précision suffisante (Δ_{ij} est de l'ordre de 10^{-3} pour les éléments les moins lourds). On peut montrer que la variation isotopique de δ est très faible et que $\Delta_{ij} \approx \epsilon_i - \epsilon_j$ est habituellement entièrement due à l'effet Bohr-Weisskopf.

Lors d'une mesure directe de μ dans une expérience de résonance magnétique nucléaire, où l'atome est placé dans un champ magnétique externe uniforme, la distribution finie des moments ne joue aucun rôle alors que, dans l'interaction hyperfine, le noyau est placé à l'intérieur du champ magnétique des électrons qui lui n'est pas uniforme. On a donc :

$$\frac{A_i}{A_j} = \frac{I_j}{I_i} \left(\frac{\mu_i}{\mu_j} \right)_{\text{résonance}} (1 + \Delta_{ij})$$

Δ_{ij} est appelée "anomalie hyperfine" différentielle entre les deux isotopes. Sa détermination apporte des renseignements intéressants sur l'origine des moments magnétiques.

Les moments magnétiques, spins nucléaires et constantes hyperfines A pour l'état $^2S_{1/2}$ des isotopes stables alcalins sont connus. La détermination du spin et du facteur A du doublet fondamental $^2S_{1/2}$ conduit donc, si l'on néglige l'anomalie hyperfine, au moment magnétique (exception faite pour le francium).

C - Interaction électrostatique.

Le hamiltonien électrostatique s'écrit :

$$\mathcal{H}_{el} = B \frac{6(\vec{I} \cdot \vec{J})^2 + 3(I \cdot J) - 2 \vec{I}^2 \cdot \vec{J}^2}{2I(2I-1) 2J(2J-1)}$$

où $B = e Q \left\langle \frac{\partial^2 v_e}{\partial z^2} \right\rangle$, où $\left\langle \frac{\partial^2 v_e}{\partial z^2} \right\rangle$ est la valeur moyenne du gradient

du champ dû aux électrons sur le noyau.

Le moment quadrupolaire électrique est défini par :

$$Q = \langle I, M=I | Q_{op} | I, M=I \rangle$$

et l'opérateur quadrupole par :

$$e Q_{op} = \int \rho_e(\vec{r}) r^2 (3 \cos^2 \theta - 1) d\tau$$

où $\rho_e(\vec{r})$ est la densité de charge du noyau.

Q a la dimension d'une surface et son signe renseigne sur la forme du noyau. Il mesure la déviation de la distribution des charges nucléaires par rapport à la symétrie sphérique.

L'énergie correspondant à l'état $|J, I, F\rangle$ est :

$$W_e = B \frac{\frac{3}{2} C(C+1) - 2I(I+1) - J(J+1)}{I(2I-1) J(2J-1)}$$

où $B = \frac{1}{hc} e Q \Phi_{JJ}(0) = SQ$,

$\Phi_{JJ}(0)$ étant la valeur moyenne du gradient de champ électrique créé au centre du noyau par les électrons, dans la direction \vec{J} . S est habituellement connu à partir de l'étude d'un isotope stable.

L'énergie totale d'interaction est donc en résumé :

$$W(I, J, F) = A \frac{C}{2} + B \frac{\frac{3}{2} C(C+1) - 2I(I+1) J(J+1)}{I(2I-1) J(2J-1)} \quad \text{pour } I \gg 1$$

et quand $I = 1/2$ (ou $J = 1/2$), on peut montrer que le moment quadru-
polaire est nul, donc :

$$W\left(\frac{1}{2}, J, F\right) = A \frac{C}{2}$$

D - Déplacement isotopique.

Les centres de gravité des structures hyperfines de deux isotopes
différents i et j sont décalés l'un par rapport à l'autre du dépla-
cement isotopique (I.S.) :

$$\delta v_{ij} = (\delta v_{ij})_M + (\delta v_{ij})_{\text{vol.}}$$

a) L'effet de masse.

Le premier terme dans le déplacement isotopique est dû à l'effet
de masse qui dépend du mouvement des noyaux de masse finie M . Il
dépend de l'opérateur $\sum_{a,b} p_a \cdot p_b$, p_a et p_b étant les moments des
deux électrons a et b . Cet effet de masse peut être décomposé en
deux parties : $\sum_a p_a^2$ et $\sum_{a \neq b} p_a \cdot p_b$. La première, connue sous le nom
d'effet de masse normal (ou effet de Bohr) est telle que :

$$(\delta v_{ij})_M = \frac{v}{1836} \cdot \frac{M_i - M_j}{M_i \cdot M_j}$$

(M_i étant exprimé en unités de masse du proton).

Cet effet décroît rapidement avec M .

La seconde partie ($a \neq b$) tient compte des effets de corrélation dans n'importe quel couple d'électrons et il est impossible à calculer exactement pour plus de deux électrons. C'est l'effet de masse spécifique qui peut devenir plus important que l'effet de masse normal pour les éléments de masse moyenne. Il est aussi proportionnel à $(M_i - M_j) / M_i \cdot M_j$ ce qui implique que l'effet de masse total varie régulièrement le long d'une chaîne d'isotopes. C'est très souvent la seule chose qu'on puisse dire à propos du déplacement isotopique de masse total.

b) L'effet de volume.

Le second terme dans le déplacement isotopique est l'effet de volume ; il est dû à l'effet de la distribution spatiale de la charge nucléaire sur les énergies de liaison des électrons. Dans la théorie la plus simple, δv_{ij} pour une transition donnée, s'exprime comme :

$$\delta v_{ij} = \frac{4\pi a_0^3}{Z} \Delta |\Psi(0)|^2, \quad \delta_{ij} \langle r^2 \rangle.$$

a_0 est l'unité de longueur atomique, Z le nombre de protons, $\Delta |\Psi(0)|^2$ la différence entre les densités électroniques (non relativistes), au centre du noyau, entre les deux niveaux de la transition, et $\delta_{ij} \langle r^2 \rangle$ est la variation isotopique du carré moyen du rayon de charge nucléaire.

Les théories relativistes plus complètes montrent que δv peut être factorisé en un terme F dépendant seulement de la structure électronique et en un terme λ_{ij} dépendant seulement des propriétés du noyau considéré :

$$\delta v_{ij} = F \cdot \lambda_{ij} \quad \text{avec} \quad F = \frac{4\pi a_0^3}{Z} \Delta |\Psi(0)|^2 f(Z),$$

$f(Z)$ tenant compte de corrections relativistes et de l'effet de la charge du noyau sur la fonction d'onde : $f(Z)$ varie de 1 à 0,7 quand Z varie de 1 à 90.

λ_{ij} est souvent écrit sous la forme :

$$\lambda_{ij} \approx \delta \langle r^{2\rho} \rangle \quad \text{avec} \quad \rho = \sqrt{1 - \alpha^2 Z^2} \sim 1 .$$

Comme δv_{ij} est proportionnel à $\delta \langle r^2 \rangle$ (ou $\delta \langle r^{2\rho} \rangle$), sa mesure donne des informations sur le noyau. Pour déterminer de façon absolue $\delta \langle r^2 \rangle$, $\Delta |\Psi(0)|^2$ doit être connu. Il ne peut pas être déterminé par des calculs ab initio pour les transitions optiques ; en revanche, on peut le déduire des autres paramètres expérimentaux comme les constantes de structure hyperfine qui dépendent aussi de $|\Psi(0)|^2$. Dans ce cas, $\Delta |\Psi(0)|^2$ est relié à la quantité $|\Psi(0)|^2$ de l'un des niveaux de la transition par la relation

$$\Delta |\Psi(0)|^2 = \beta_e |\Psi(0)|^2$$

β_e étant "le facteur d'écran" qui peut être évalué par des calculs Hartree-Fock.

Dans le cas où l'un des niveaux de la transition est un niveau s , c'est lui qui est déterminant et l'on a :

$$\Delta |\Psi(0)|^2 \approx \pm |\Psi_s(0)|^2 .$$

c) Séparation des deux effets.

Le déplacement isotopique total est :

$$\delta v_{ij} = M_0 \frac{M_i - M_j}{M_i \cdot M_j} + F \lambda_{ij}$$

M étant en général impossible à calculer, il n'y a pas de moyen simple de séparer les deux effets. Cependant, alors que l'effet de masse total est très inférieur à l'effet de volume pour les éléments les plus lourds (moins de 1% pour Hg) il peut être du même ordre de grandeur pour les éléments de masses intermédiaires ou supérieur chez les plus légers (50 fois plus important pour Na). Si l'on s'intéresse à l'effet de

volume, la séparation des deux effets n'est donc nécessaire que dans ces deux derniers cas.

Dans une longue chaîne d'isotopes, il est possible de détecter un effet de volume plus petit que l'effet de masse total en exploitant la variation régulière de l'effet de masse le long de la chaîne.

Chapitre III

PRINCIPE ET DISPOSITIF EXPERIMENTAUX

Deux jets thermiques de potassium naturel polyisotopiques sont éclairés respectivement par un faisceau laser modulé H.F. et par un autre faisceau laser non modulé. La fréquence d'une bande latérale du faisceau laser modulé est asservie sur une fréquence de résonance atomique, ce qui permet de déplacer par balayage H.F. la fréquence centrale du faisceau modulé. Les deux faisceaux - modulé et non modulé - provenant d'une même source laser, la fréquence du faisceau non modulé est donc elle aussi balayée lorsqu'on balaie la fréquence de modulation H.F..

Les résonances optiques sont enregistrées par détection de la lumière de fluorescence émise par les jets.

A - Principe de l'expérience.

On suppose, pour plus de simplicité, que les jets atomiques, indicés 1 et 2 sont formés à partir d'isotopes différents (indicés aussi 1 et 2 respectivement) du même élément. Le faisceau issu d'un laser à colorant continu, monomode et accordable, est divisé en deux faisceaux.

Avant de croiser à angle droit le jet atomique 1, le premier faisceau lumineux interagit dans un cristal avec une onde électrique H.F.. A la sortie du cristal le spectre de ce faisceau a une structure en dents de peigne constituée d'une fréquence centrale ν_L et de plusieurs fréquences latérales : $\nu_k = \nu_L + k \nu_{RF}$ (Figure 1) où $k = \pm 1, \pm 2, \dots$.

En accordant la fréquence ν_L du laser source, on peut asservir l'une des fréquences latérales ν_{k_0} ($k_0 = -1$ sur la Figure 1) sur la fréquence atomique ν_1 de l'isotope 1, constituant le jet atomique 1. Pour ce faire, une boucle d'asservissement utilisera comme référence la lumière de fluorescence émise par le jet atomique 1 et réagira sur le laser source pour maintenir le signal lumineux à sa valeur maximale.

Le second faisceau laser, non modulé, croise orthogonalement le jet atomique 2. La fréquence latérale ν_{k_0} étant maintenue accordée sur la résonance ν_1 , on balaye la fréquence de modulation du cristal ν_{RF} ; ceci entraîne le balayage de la fréquence centrale ν_L , donc de la fréquence du faisceau laser interagissant avec le jet atomique 2.

Lorsque ce rayonnement entre en résonance avec une transition hyperfine de l'isotope 2, le jet atomique fluoresce et l'on est sûr d'avoir $\nu_L = \nu_2$; il devient alors possible de mesurer l'écart spectral entre les fréquences de résonance correspondant aux deux isotopes avec une grande précision, puisqu'il est égal à $k_0 \nu_{RF}$.

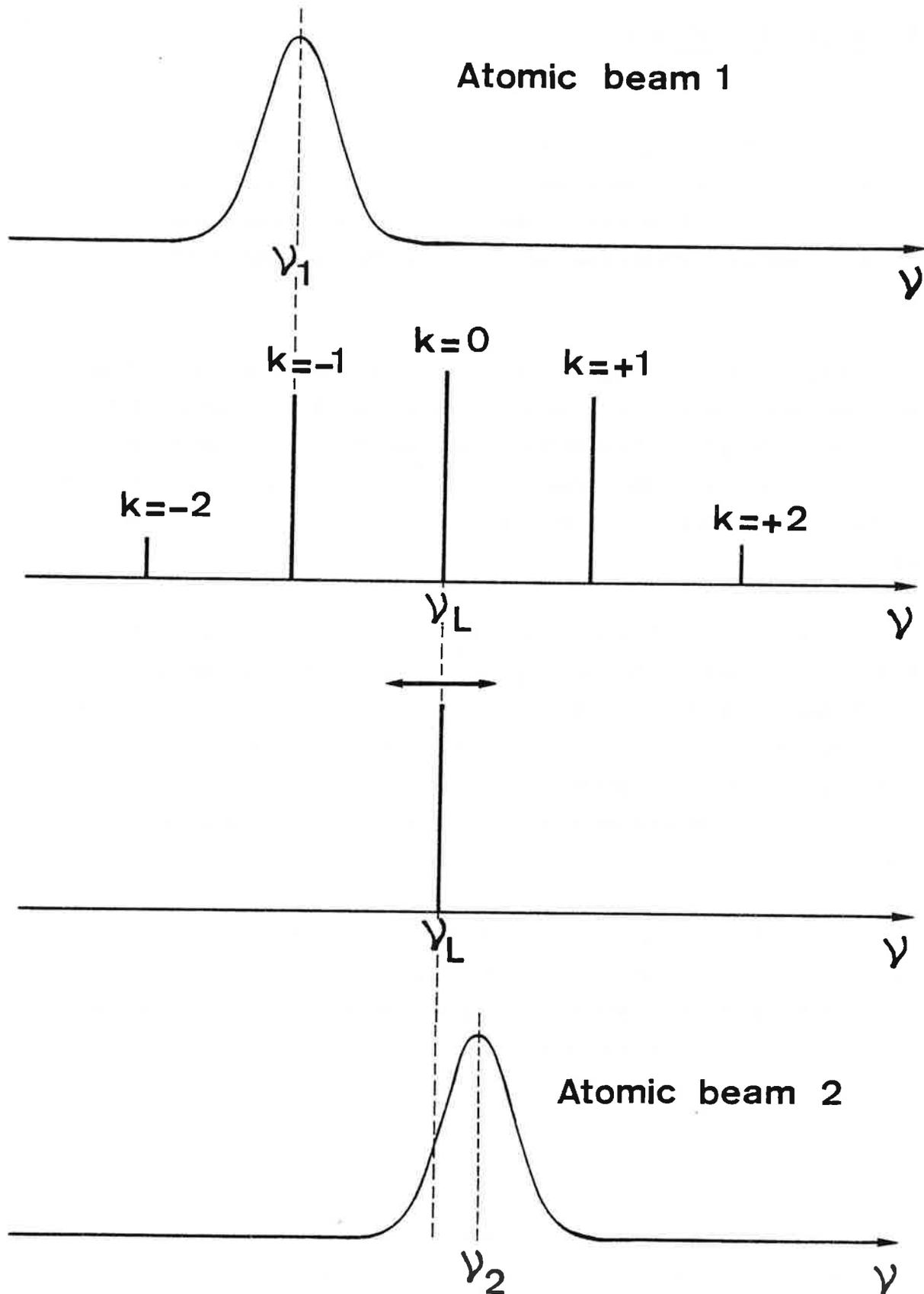


Figure 1 : Principe de l'expérience. La fréquence de la bande latérale k du faisceau laser est $\nu_k = \nu_L + k \nu_{RF}$.

B - Dispositif expérimental.

Le montage expérimental qui nous a permis de réaliser cette expérience est schématisé en Figure 2.

Un laser à colorant monomode et accordable (Coherent Radiation 599) est pompé par les raies rouges d'un laser à krypton ionisé (Coherent Radiation 3000 K). Le colorant qui a été utilisé est de l'oxazine 750, la place de fluorescence de ce colorant recouvrant les longueurs d'onde des raies D_1 et D_2 du potassium : $\lambda_1 = 769,9$ nm et $\lambda_2 = 766,5$ nm . A la sortie du laser à colorant, le faisceau est divisé en deux parties par une lame séparatrice.

Le premier faisceau est envoyé sur un cristal non linéaire de LiTaO_3 . Ce cristal est excité par le champ électrique H.F. fourni par un générateur de radiofréquence couplé avec un amplificateur linéaire 50 Watts. Le faisceau laser modulé est analysé en fréquence par un analyseur de modes confocal. Le spectre de fréquences du rayonnement laser modulé est visualisé sur un oscilloscope.

Le faisceau laser qui est modulé excité à angle droit un jet thermique de potassium naturel (jet atomique 1). La fluorescence de ce jet est détectée par un photomultiplicateur suivi par un amplificateur à détection synchrone.

La longueur de la cavité du laser à colorant est modulée à basse fréquence (~ 160 Hz) afin d'assurer son asservissement. Il en résulte que l'intensité du signal de fluorescence détecté sur le jet atomique est aussi modulée. Cette modulation est analysée par l'amplificateur à détection synchrone. Le signal de sortie délivré par l'amplificateur correspond à la dérivée du signal de fluorescence incident. C'est ce signal qui est utilisé pour l'asservissement de la fréquence d'une bande latérale sur la fréquence de résonance de la transition hyperfine désirée.

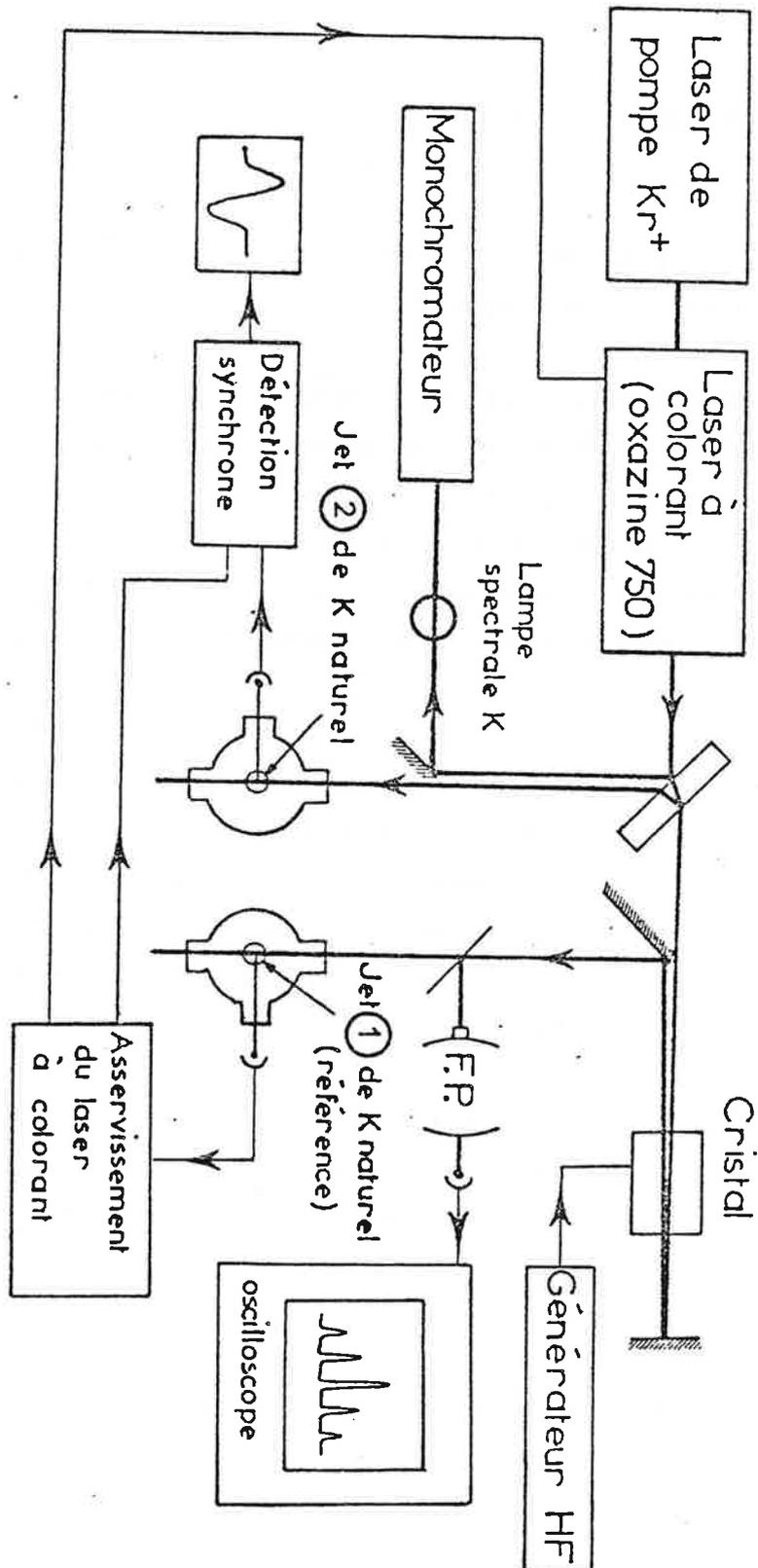


Fig. 2 : Schéma du montage employé au laboratoire Aimé Cotton pour étudier en fluorescence la structure hyperfine et les déplacements isotopiques présentés par les isotopes naturels du potassium.

Le second laser interagit à angle droit avec le jet atomique 2 . Comme l'abondance naturelle de l'isotope stable ^{40}K du potassium est à peine de 0,0118% , des précautions spéciales ont été prises pour réduire la lumière parasite. Celle-ci provient essentiellement de la diffusion par les fenêtres d'entrée-sortie du faisceau lumineux et de la lumière émise par la vapeur de potassium résiduelle dans la région d'interaction atomes-lumière. Ces précautions ont consisté en particulier à entourer cette région d'une boîte métallique noire refroidie à la température de l'azote liquide.

Le niveau du signal de fluorescence qu'on escompte recueillir dans le cas du ^{40}K étant très faible, nous avons utilisé un photomultiplicateur très sensible (RCA C31034) suivi d'un amplificateur à détection synchrone. Le bruit thermique sur le photomultiplicateur est réduit à sa valeur minimum en refroidissant celui-ci à -10°C . Le signal de sortie de l'amplificateur à détection synchrone est enregistré en fonction de la fréquence H.F..

Pour les deux jets atomiques, le facteur de collimation est égal à environ 80 . La largeur naturelle des raies de résonance est 6 MHz, mais à cause de l'effet Doppler résiduel, la largeur des raies enregistrées est de l'ordre de 13 MHz. L'intensité des faisceaux laser sur chaque jet atomique est atténuée à l'aide des densités D_1 et D_2 pour éviter un élargissement supplémentaire par puissance. Le réglage grossier de la fréquence laser au voisinage des raies de résonance du potassium est réalisée à l'aide d'une lampe spectrale et d'un spectromètre à réseau.

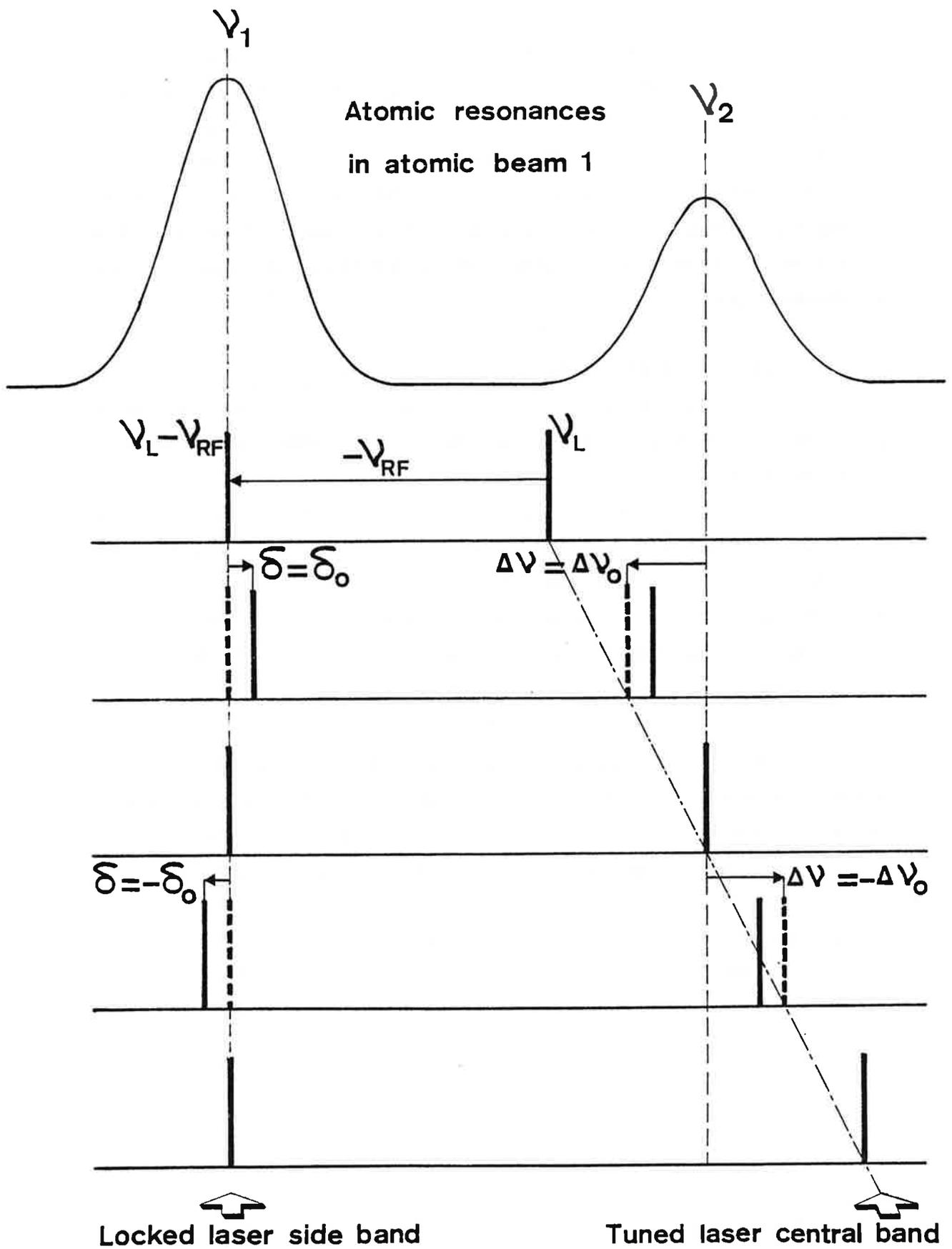
C - Procédure expérimentale.

Pour décrire le principe de l'expérience, nous avons supposé que les jets atomiques sont formés à partir de deux isotopes différents du potassium. En fait, au cours de l'expérience, nous avons utilisé des échantillons de potassium naturel pour produire les deux jets thermiques. Par conséquent, les trois isotopes stables du potassium étaient présents dans les deux jets, dans le rapport de leurs abondances naturelles (^{39}K : 93,10% , ^{40}K : 0,0118% et ^{41}K : 6,88%). Pour cette raison, la procédure expérimentale à suivre est un peu plus compliquée que celle qui a été exposée au paragraphe A, bien que son principe reste valable.

Tout d'abord, nous avons tiré parti de la présence des mêmes isotopes dans les deux jets atomiques pour éliminer une éventuelle différence entre les décalages Doppler correspondant à la même fréquence de résonance. La modulation H.F. étant débranchée, on asservit la fréquence du laser sur un maximum de fluorescence dans le jet atomique 1. Le four du jet atomique 2 est alors translaté comme il est indiqué sur la Figure 2 , jusqu'à enregistrer un maximum de fluorescence sur le jet atomique 2, ce qui se traduit par un signal de sortie nul sur l'amplificateur à détection synchrone 2 . Le décalage Doppler est alors identique sur les deux jets. Ce réglage peut être effectué avec une précision meilleure que 100 KHz.

La présence de tous les isotopes dans les deux jets atomiques est, en revanche, moins avantageuse pour la procédure d'asservissement de la fréquence du laser.

Figure 3 : Première procédure expérimentale. La bande latérale k_0 ($k_0 = -1$ sur la figure) est asservie sur la fréquence atomique ν_1 . Quand la bande laser centrale (fréquence ν_L) balaye une résonance atomique (fréquence ν_2), la bande latérale se décale de δ . δ est nul pour $\nu_L = \nu_2$ et δ est une fonction impaire de $\Delta\nu = k_0 \nu_{\text{RF}} + (\nu_2 - \nu_1)$
 $(\Delta\nu = - \nu_{\text{RF}} + \nu_2 - \nu_1 \text{ sur la figure})$



En effet, revenons à la discussion précédente du principe expérimental en tenant compte maintenant de la présence de tous les isotopes dans les deux jets (Figure 3). La modulation HF étant branchée, la fréquence d'une des bandes latérales du laser est asservie sur la résonance atomique ν_1 . En balayant la fréquence HF d'excitation du cristal, on amène progressivement la fréquence centrale (donc la fréquence d'oscillation du laser) à la résonance avec la fréquence atomique ν_2 sur le deuxième jet.

Cependant, au cours de ce réglage, la fréquence ν_L induit aussi un signal de fluorescence dans le jet atomique 1 ; ce signal se superpose dans la détection au signal de fluorescence induit par la bande latérale du faisceau laser. L'asservissement de la fréquence de la bande latérale est réglé de façon à maintenir le signal de fluorescence total à un niveau maximum. Dans la situation illustrée en Figure 3, il réagira à l'augmentation du signal de fluorescence total en délivrant un signal d'erreur positif qui, injecté dans l'électronique du laser, produira un décalage de la fréquence centrale - donc de la bande latérale - de manière à retrouver un signal maximum.

Dans le cas d'un profil de raie symétrique, et si l'intensité des bandes centrale et latérales est maintenue constante durant le balayage de la fréquence H.F., le décalage de la fréquence de la bande latérale δ est une fonction impaire de $\Delta\nu = \nu_2 - \nu_1 + k_0 \nu_{RF}$ (Figure 3).

En particulier, lorsque $\nu_L = \nu_2$, sur le jet atomique 2, le signal de fluorescence recueilli sur le jet atomique 1 est maximum lorsque la fréquence centrale et la bande latérale k_0 ($k_0 = -1$ dans l'expérience) sont en résonance exacte avec ν_1 et ν_2 . La mesure de l'intervalle spectral $\nu_1 - \nu_2$ entre les centres des deux résonances exactes n'est donc pas affecté par le glissement de la fréquence d'asservissement de la bande latérale au cours du balayage.

Cependant, il en résultera malgré tout un élargissement de la courbe de résonance enregistrée sur le jet atomique 2 (sans décalage

de sa fréquence centrale). Ce décalage de la fréquence d'asservissement est évidemment d'autant plus petit que l'isotope 2 est moins abondant par rapport à l'isotope 1. Dans le cas des mesures effectuées sur ^{40}K comme isotope 2, avec ^{39}K comme isotope 1, ce décalage est évidemment insignifiant.

Pour assurer un asservissement stable au cours de la mesure d'un intervalle spectral donné, il faut que la fluorescence induite par la bande latérale du faisceau modulé, asservie sur ν_1 , soit plus intense que la fluorescence induite par la bande centrale, asservie sur ν_2 . Il est toujours possible de satisfaire à cette condition pourvu que la fréquence de la bande latérale soit asservie sur la résonance appropriée et que l'intensité de cette bande latérale soit rendue supérieure à celle de la fréquence centrale.

Cette dernière opération n'est possible que pour les deux premières bandes latérales ($k_0 = \pm 1$) dans la plage de fréquence allant de 10 à 250 MHz avec l'amplificateur H.F. dont nous disposons - 50 Watt en sortie maximum jusqu'à 250 MHz. Il faut en même temps s'assurer que les autres bandes latérales du faisceau modulé n'excitent simultanément aucune autre résonance dans le jet. Il est possible de vérifier ce dernier point car la position des résonances est connue approximativement.

La procédure expérimentale qui vient d'être décrite consiste donc à asservir la fréquence d'une bande latérale tandis que la fréquence du laser, qui est aussi la fréquence de la bande centrale du faisceau modulé, est balayée en changeant la fréquence de modulation appliquée au cristal. Cette façon d'opérer a été utilisée pour toutes les mesures effectuées sur les trois isotopes $^{39,40,41}\text{K}$.

Pour les mesures sur $^{39,41}\text{K}$, la procédure inverse a été utilisée pour tester la précision de ces mesures : la fréquence du laser ν_L est à présent asservie sur la fréquence de résonance du jet atomique 2. Le

détecteur en regard du jet atomique 1 voit aussi un signal de fluorescence maximum ; par conséquent, le signal de sortie de l'amplificateur à détection synchrone reste nul.

Lorsque la fréquence H.F. est balayée de façon à amener une bande latérale en résonance avec la fréquence atomique ν_1 , le signal de fluorescence induit se traduit au niveau de la détection synchrone par une augmentation du signal de sortie. Si on désire enregistrer le profil de raie de cette résonance, il est nécessaire de maintenir l'intensité de la bande latérale du faisceau modulé à un niveau constant pendant la durée du balayage de la fréquence H.F.. Ceci est obtenu en ajustant la puissance H.F. appliquée au cristal pendant ce balayage. Ce réglage n'est cependant pas nécessaire lorsqu'on désire simplement déterminer la position exacte de la résonance puisque celle-ci est repérable par le passage à zéro du signal de sortie de l'amplificateur à détection synchrone.

Le désavantage de ce procédé, comparé au premier, réside dans le fait que le bruit dans les signaux enregistrés est plus important puisqu'il est produit par la fluorescence totale induite par la fréquence centrale et les bandes latérales. En revanche, les courbes de résonance enregistrées ne présentent pas l'élargissement observé dans la première procédure.

Chapitre IV

MESURES SPECTROSCOPIQUES

Nous exposons dans ce paragraphe les résultats spectroscopiques obtenus à partir des enregistrements des structures hyperfines des raies D_1 et D_2 pour les trois isotopes $^{39,40,41}\text{K}$. Les déplacements isotopiques des centres de gravité des structures de $^{40,41}\text{K}$ ont été déterminées par rapport au centre de gravité de la structure de l'isotope naturel le plus abondant ^{39}K .

L'étude de la structure hyperfine de la raie D_1 , correspondant aux transitions hyperfines entre le fondamental $4^2\text{S}_{1/2}$ et le premier niveau excité $4^2\text{P}_{1/2}$ permet de déterminer la constante de structure hyperfine de ce dernier $A(4^2\text{P}_{1/2})$. L'étude de la raie D_2 permet de déterminer les deux constantes hyperfines $A(4^2\text{P}_{3/2})$ et $B(4^2\text{P}_{3/2})$.

A - Structure hyperfine de la raie D_1

Les positions relatives des composantes hyperfines de la raie D_1 sont représentées dans les Figures 4a, b et c pour les trois isotopes de masse 39, 40 et 41 respectivement. L'origine de l'échelle des fréquences correspond à la raie de référence $F=2 \rightarrow F'=1$ de l'isotope 39. La Figure 4d reproduit un enregistrement typique d'une partie de la structure hyperfine de la raie D_1 de l'isotope ^{40}K (composantes rouges du spectre).

Les différents écarts hyperfins, mesurés par rapport à la composante la plus rouge du spectre de ^{39}K , sont indiqués sur la Figure 4.

Nous décrivons d'abord les résultats obtenus pour les isotopes de masse 39 et 41, l'isotope 40 étant traité en particulier.

a) Isotopes ^{39}K et ^{41}K

Les écarts hyperfins mesurés, numérotés de ν_1 à ν_5 , sont indiqués sur la figure. La structure hyperfine du fondamental, connue auparavant avec une grande précision

$$\Delta\nu_{\text{HFS}}(^{39}\text{K}) = 461.720 \text{ MHz} \quad \text{et} \quad \Delta\nu_{\text{HFS}}(^{41}\text{K}) = 254.014 \text{ MHz}$$

a été remesurée pour tester la précision de notre méthode de mesure.

Les intervalles de fréquence mesurés sont :

$$\nu_1 = 55.6(0.3) \text{ MHz}$$

$$\nu_2 = 188.4(0.3) \text{ MHz}$$

$$\nu_3 = 158.0(0.5) \text{ MHz}$$

$$\nu_4 = 96.0(0.3) \text{ MHz}$$

$$\nu_5 = 151.5(0.5) \text{ MHz}$$

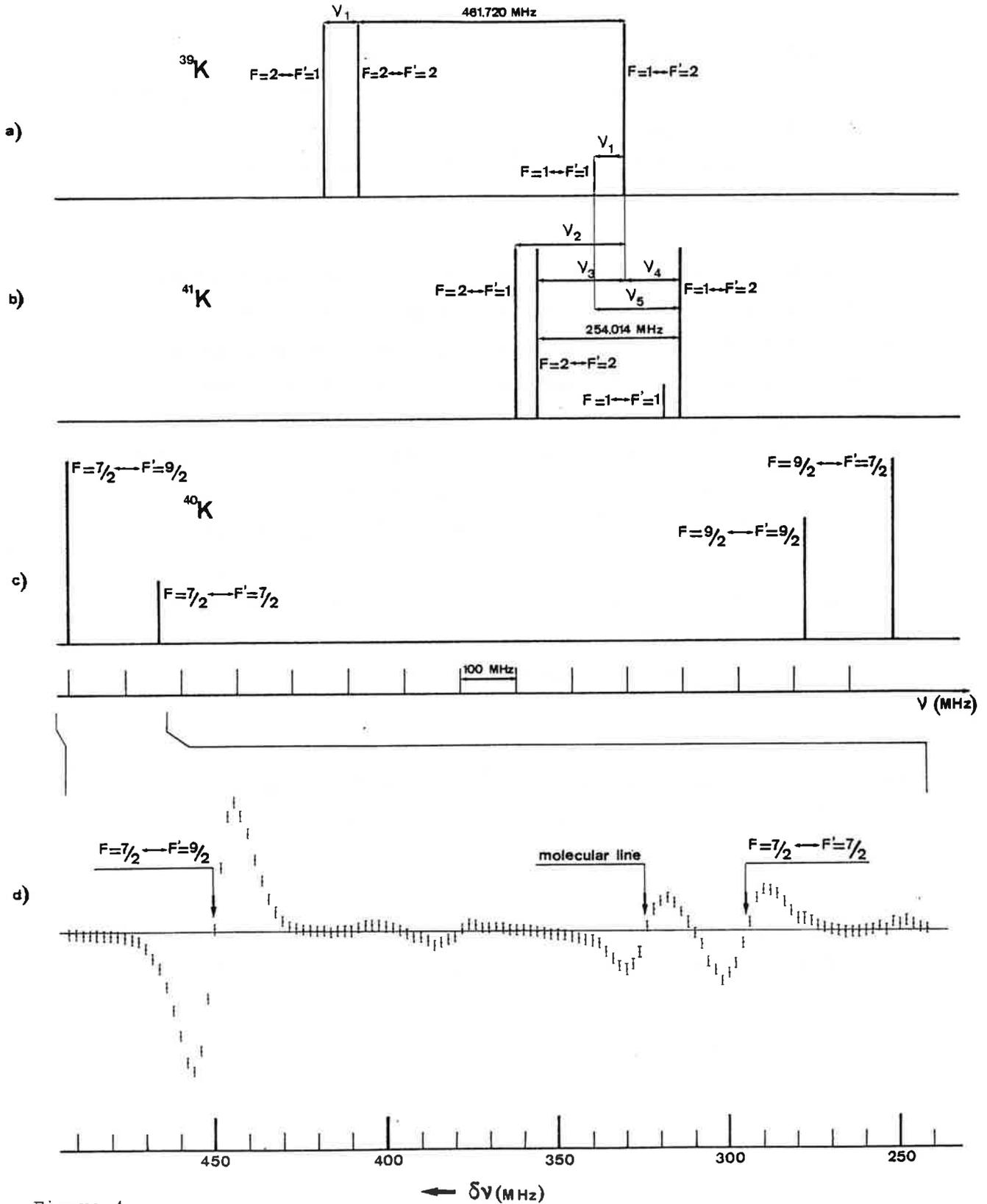


Figure 4

a et b : Structures hyperfines de la raie D_1 de ^{39}K et ^{41}K respectivement.
 c et d : Structure hyperfine de la raie D_1 de ^{40}K (a) et enregistrement type d'une partie de cette structure (d).

Pour chaque intervalle spectral mesuré, lorsque nous disposions de plus de six mesures distinctes (ν_1, ν_2, ν_4), l'écart quadratique moyen a été calculé. L'erreur affectée à la mesure correspondante est égale au double de l'écart quadratique le plus important. Lorsqu'une seule mesure était disponible (ν_3, ν_5), l'erreur entachant cette mesure a été évaluée à 0.5 MHz.

Pour un intervalle spectral donné, nous n'avons jamais mesuré d'écart supérieur à ces valeurs entre deux mesures différentes. De plus, pour éviter les erreurs de mesure systématiques, nous avons pris les précautions habituelles. Les structures ont été explorées à plusieurs reprises en utilisant les deux procédés expérimentaux différents, décrits au paragraphe II-C. Mieux encore, dans le cas de la structure hyperfine de l'état fondamental, il existe dans la littérature des mesures plus précises que les nôtres, obtenues par des méthodes de spectroscopie radiofréquence (Méthode de "Rabi", [75,76,77], par exemple). Nous avons comparé nos mesures à ces résultats antérieurs ; dans tous les cas, l'accord s'est révélé excellent et nos estimations pour nos barres d'erreur pessimistes.

Nous avons enfin utilisé les relations $\nu_5 - \nu_4 = \nu_1$ et $\nu_3 + \nu_4 = \Delta\nu_{\text{HFS}}(^{41}\text{K})$ pour tester la fiabilité de nos mesures. Comme on peut le voir, ces relations sont bien vérifiées, en deçà des barres d'erreur.

A partir des intervalles de fréquence mesurés, nous avons calculé les constantes hyperfines du premier niveau excité ($J = 1/2$) de ^{39}K et ^{41}K , ainsi que le déplacement isotopique de la structure de ^{41}K par rapport à celle de ^{39}K . Les différents résultats sont rassemblés dans le Tableau 2 où ils sont comparés à des résultats antérieurs [71,78,79].

Le résultat frappant est que notre valeur pour la constante hyperfine de l'isotope 39, $A_{39}(4^2P_{1/2}) = 27.80(0.15)$ est en bon accord

avec la valeur précédemment mesurée au C.E.R.N. par une méthode de spectroscopie laser [71]. En revanche, ces deux mesures sont en contradiction avec l'unique mesure de cette constante existant par ailleurs dans la littérature (Buck et Rabi, 1957) :

$$A_{39} (4^2P_{1/2}) = 28.85(0.30)\text{MHz} \quad . \quad [78]$$

b) Isotope ^{40}K .

Dans le cas de cet isotope, nous n'avons mis en oeuvre que la première procédure expérimentale exposée plus haut, ^{40}K étant beaucoup moins abondant que ^{39}K , cette procédure ne pose pas de problème comme indiqué plus haut.

Les positions des quatre composantes hyperfines sont indiquées sur la Figure 4c . On peut remarquer que la structure hyperfine de ^{40}K est bien plus large que celles des deux autres isotopes et que les quatre composantes hyperfines sont situées très en dehors de ces dernières. Il n'a donc pas été nécessaire d'utiliser un échantillon de potassium enrichi en ^{40}K .

La position des composantes "rouges" a été déterminée par rapport à la composante $F=2 \rightarrow F'=1$ de l'isotope 39 et les composantes bleues par rapport à la composante $F=1 \rightarrow F'=2$ du même isotope de référence.

Les intervalles de fréquence à mesurer se situant entre 250 et 500 MHz , c'est la deuxième bande latérale ($k_0 = \pm 2$) du faisceau modulé H.F. qui a été asservi sur les raies de référence de ^{39}K .

La Figure 4d reproduit l'un des enregistrements réalisés pour les composantes "bleues" $F=1 \rightarrow F'=1,2$ de la structure hyperfine de ^{40}K . Un léger fond, à variation lente, a été observé sur ces enregistrements. Il est dû à la fluorescence des autres isotopes ^{39}K et ^{41}K présents dans le jet. Ce fond a été calculé et soustrait de l'enregistrement présenté en Figure 4.

Cet enregistrement présente en plus une résonance inattendue, qui est probablement due à la présence de molécules étrangères dans le jet. Des raies moléculaires de ce type ont été observées à différentes fréquences. Nous avons essayé de déterminer la masse de cette molécule en comparant les décalages Döppler pour une de ces résonances moléculaires et pour une résonance atomique du potassium lorsque le four produisant le jet atomique est translaté. D'après les résultats obtenus, cette masse doit se situer entre 40 et 50 unités de masse atomique. Comme le sodium est l'impureté la plus abondante dans notre échantillon de potassium naturel, des molécules de Na_2 seraient vraisemblablement à l'origine des résonances observées.

La présence d'une raie moléculaire à proximité de la composante hyperfine $F=1 \rightarrow F'=1$ de ^{40}K nous a empêché de déterminer de façon précise la fréquence de résonance correspondante ; néanmoins, les trois autres composantes ont été identifiées et mesurées sans ambiguïté.

La constante de structure hyperfine du fondamental ayant été mesurée précisément par une technique de résonance magnétique [75] $A_{40}(4s^2S_{1/2}) = -285.731(2)$ MHz, nous avons pu déduire, à partir des trois valeurs expérimentales mesurées, la constante hyperfine $A_{40}(^2P_{1/2})$ et le déplacement isotopique de la structure de l'isotope 40 par rapport à celle de l'isotope 39.

Les résultats obtenus après un ajustement par moindres carrés, sont portés dans le Tableau 2.

B - Structure hyperfine de la raie D_2 .

La structure hyperfine de la raie D_2 des isotopes 39 et 41 est reproduite dans les Figures 5a et 5b respectivement. Les intervalles de fréquence mesurés sur ces deux structures sont ν_6 , ν_7 et ν_8 .

La structure de la raie D_2 pour l'isotope 40, quant à elle, est représentée en Figure 5c au-dessus de la reproduction d'une partie d'un enregistrement type de cette structure (composantes "bleues"). L'origine de l'échelle des fréquences correspond à la raie de référence $F=2 \rightarrow F'=3$ de l'isotope 39, pour toutes les mesures effectuées sur cet isotope.

Les résultats obtenus pour la détermination des constantes de structure hyperfine A ($4 \ ^2P_{3/2}$) et B ($4 \ ^2P_{3/2}$) pour ^{40}K et du déplacement isotopique (I.S.) pour ^{40}K et ^{41}K sont portés sur le Tableau 2.

a) Isotopes ^{39}K et ^{41}K .

La structure hyperfine de l'état excité $4p \ ^2P_{3/2}$ étant serrée, les composantes de la raie D_2 ne sont pas complètement résolues pour ces deux isotopes (Figures 5a - 5b).

Les constantes hyperfines de l'état excité ont été très précisément déterminées à l'aide d'une technique de croisement de niveaux par Schmieder [80] et Ney [81] . En revanche, les déplacements isotopiques restaient à mesurer.

Pour les deux isotopes ^{39}K et ^{41}K , trois intervalles spectraux seulement ont pu être mesurés ; ils sont indiqués sur la Figure 5 par ν_6 , ν_7 et ν_8 . Des corrections tenant compte du chevauchement des

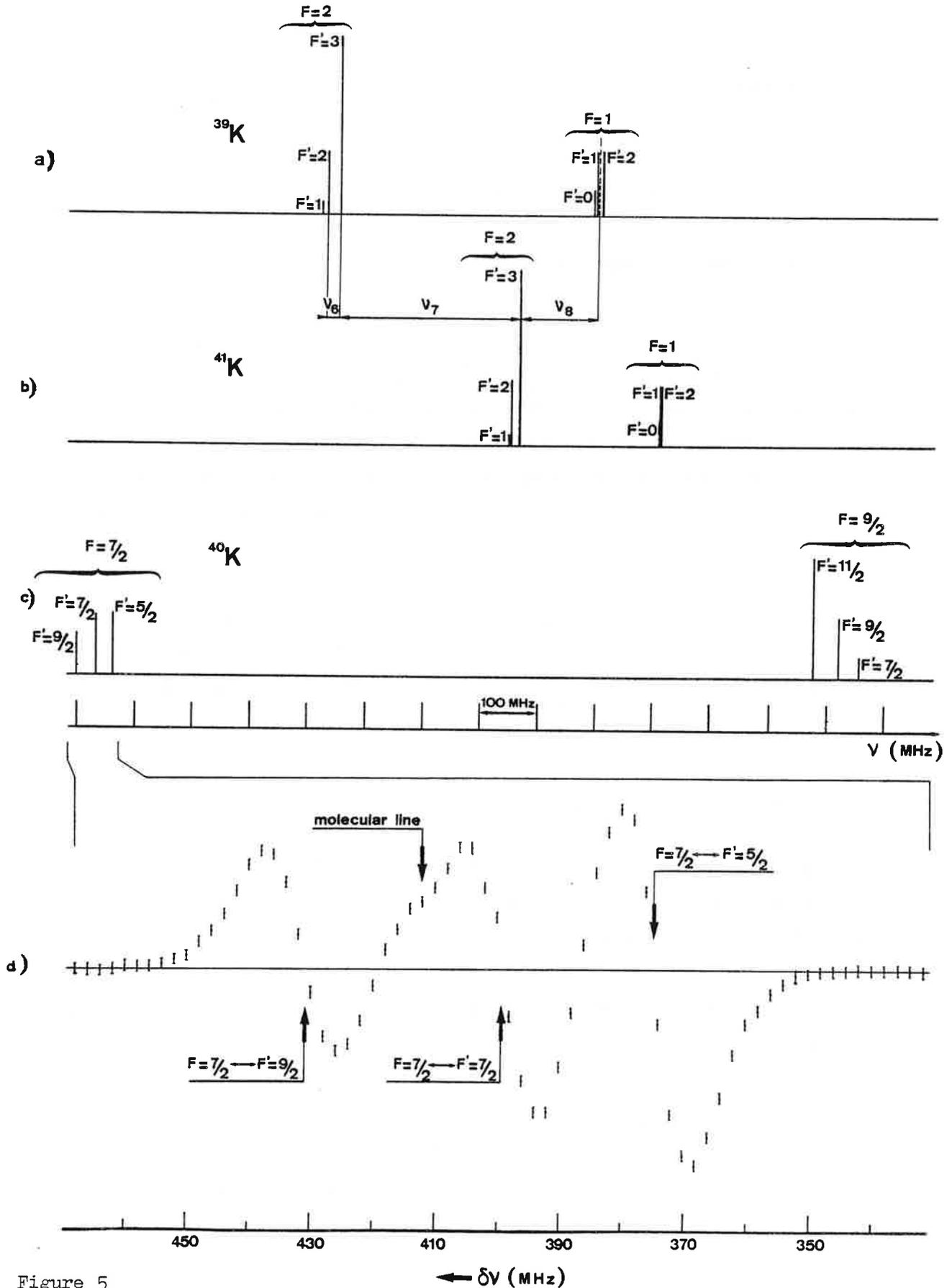


Figure 5

a et b : Structures hyperfines de la raie D₂ de ³⁹K et ⁴¹K respectivement.
 c et d : Structure hyperfine de la raie D₂ de ⁴⁰K (c) avec un enregistrement type d'une partie de la structuré.

résonances voisines ont été calculées et prises en compte dans la détermination de la fréquence centrale de chaque raie. Les intervalles spectraux mesurés après cette opération sont :

$$\nu_6 = 21.0 (0.3) \text{ MHz}$$

$$\nu_7 = 308.05(0.30) \text{ MHz}$$

$$\nu_8 = 123.8 (0.5) \text{ MHz} .$$

Les remarques qui ont été faites au paragraphe précédent sur l'erreur qui entache chaque mesure d'intervalle sont valables ici aussi.

Pour tester la validité de nos mesures, nous avons comparé notre valeur expérimentale pour ν_6 à deux autres valeurs calculées à partir des constantes de structure hyperfine mesurées par deux auteurs différents.

En effet, ν_6 est l'intervalle spectral entre les fréquences de résonance de deux transitions hyperfines issues du même niveau hyperfin fondamental : $F=2 \longleftrightarrow F'=3$ et $F=2 \longleftrightarrow F'=2$. On peut ainsi l'exprimer en fonction des constantes A et B du niveau excité de la raie D_2 :

$$\nu_6 = \Delta\nu_{39} (F'=3 \longleftrightarrow F'=2) = 3 A_{39} (4 \ ^2P_{3/2}) + B_{39} (4 \ ^2P_{3/2}) .$$

On a pu ainsi vérifier l'excellent accord de notre mesure de $\nu_6 = 21.0(0.3) \text{ MHz}$, avec les valeurs déduites des constantes hyperfines données dans les références [80] et [81] .

$$[80] \quad \Delta\nu_{39} (F'=3 \longleftrightarrow F'=2) = 20.90(0.36) \text{ MHz}$$

$$[81] \quad \Delta\nu_{30} (F'=3 \longleftrightarrow F'=2) = 21.11(0.19) \text{ MHz} .$$

A partir de la mesure de l'intervalle ν_7 et à l'aide des valeurs des constantes hyperfines données par Ney [81], on a pu déterminer le déplacement isotopique de la structure de ^{41}K par rapport au centre de gravité de la structure de l'isotope référence ^{39}K :

$$I.S. (D_2)^{41-39} = 236.15(0.37) \text{ MHz} .$$

b) Isotope ^{40}K .

La structure hyperfine de la raie D_2 de l'isotope ^{40}K a été étudiée en détail. Cette structure est plus large que celle des deux autres isotopes et les raies de résonance sont toutes résolues. La position des six composantes hyperfines est indiquée sur la Figure 5c ; elles ont été observées toutes les six expérimentalement et leurs écarts en fréquence ont été mesurés.

Pour les composantes "rouges", la fréquence de référence utilisée est celle qui correspond à la transition hyperfine $F=2 \rightarrow F'=3$ de l'isotope ^{39}K ; du côté des composantes "bleues", la référence a été placée à l'intérieur du groupe de raies non résolues correspondant aux composantes bleues de ^{39}K : $F=1 \rightarrow F'=0,1,2$. Ces dernières mesures dépendent donc de cette référence. Néanmoins, l'intervalle spectral séparant les deux raies de référence a été mesurée. Cette mesure a donné :

$$\Delta\nu_{\text{ref.}} = \nu_7 + \nu_8 = 431.85(0.58) \text{ MHz} .$$

La Figure 5d reproduit un des enregistrements qui a été obtenu pour les trois composantes hyperfines rouges de ^{40}K . Le fond dû à la fluorescence de ^{39}K et ^{41}K a été calculé et soustrait de l'enregistrement original, comme pour les mesures effectuées sur la raie D_1 . Ici encore, une opération de déconvolution est nécessaire pour déterminer exactement la position des résonances à cause de la présence d'une raie moléculaire au milieu de la structure.

Toutes les grandeurs hyperfines inconnues : $A_{40} (4 \ ^2P_{3/2})$, $B_{40} (2P_{3/2})$, $I.S. (D_2)^{40-39}$, ainsi que l'écart de fréquence $\Delta\nu_{\text{ref.}} = \nu_7 + \nu_8$, ont été déterminées à partir des positions des six composantes hyperfines de ^{40}K à l'aide d'un ajustement par les moindres carrés. La valeur calculée pour l'intervalle $\Delta\nu_{\text{ref.}}$ entre

les positions des références dans la structure de ^{39}K est :

$$\Delta v_{\text{réf.}}^{\text{cal.}} = \nu_7 + \nu_8 = 432.2(0.6) \text{ MHz} .$$

Cette valeur est compatible avec celle qui provient d'une mesure directe sur les enregistrements (voir ci-dessus).

Le déplacement isotopique est obtenu à partir de nos mesures en utilisant les valeurs des constantes hyperfines du niveau excité $4^2\text{P}_{3/2}$ données dans [80] et [81] pour l'isotope ^{39}K . On a ainsi trouvé que :

$$\text{I.S. } (D_2)^{40-39} = 126.43(0.30) \text{ MHz} .$$

Les divers résultats obtenus pour la raie D_2 de ^{40}K sont regroupés dans le Tableau 2 avec ceux qui ont été obtenus pour les deux autres isotopes. On peut voir que l'accord avec les valeurs rapportées par d'autres auteurs est toujours bon.

TABLEAU 2

Raie D₁

Isotope	A ($4^2P_{1/2}$) MHz		I.S. par rapport à ^{39}K (MHz)	
	Nos résultats	Autres résultats	Nos résultats	Autres résultats
^{39}K	27.80(0.15)	28.85(0.30) ^a 27.5 (0.4) c	-	-
^{40}K	-34.49(0.11)	-	125.58(0.26)	-
^{41}K	15.19(0.21)	-	235.27(0.33)	222(9) b

a) Référence [78] b) Référence [79] c) Référence [71]

308

Raie D₂

Isotope	A ($4^2P_{3/2}$) MHz		B ($4^2P_{3/2}$) MHz		I.S. par rapport à ^{39}K (MHz)	
	Nos résultats	Autres	Nos résultats	Autres	Nos résultats	Autres
^{39}K		6.1 (0.1) d		2.9 (0.2) d		
		6.13(0.05) ^e		2.72(0.12) ^e		
^{40}K	-7.48(0.06)	-7.59(0.06) ^f	-3.23(0.50)	-3.5 (0.5) f		126.43(0.30)
^{41}K		3.40(0.8) e		3.34(0.24) ^e		236.15(0.37)

d) Référence [80] e) Référence [81] f) Référence [82]

V - CONCLUSION

L'interprétation nucléaire des résultats obtenus sur l'étude des isotopes de K est faite dans [73]. Pour notre part, nous nous contenterons de donner quelques remarques conclusives aux résultats et à la technique expérimentale exposée dans cette partie.

En soustrayant des déplacements isotopiques mesurés pour les deux raies D_1 et D_2 la quantité correspondant à l'effet de masse normal, on détermine un déplacement isotopique résiduel $\Delta\nu_R$ qui est la somme de l'effet de masse spécifique et de l'effet de volume. On trouve ainsi :

$$\begin{aligned} \text{Pour la raie } D_1 : \Delta\nu_R^{40-39}(D_1) &= -10.79(0.26) \text{ MHz} , \\ \Delta\nu_R^{41-39}(D_1) &= -30.50(0.33) \text{ MHz} . \end{aligned}$$

$$\begin{aligned} \text{Pour la raie } D_2 : \Delta\nu_R^{40-39}(D_2) &= -10.55(0.30) \text{ MHz} , \\ \Delta\nu_R^{41-39}(D_2) &= -30.80(0.37) \text{ MHz} . \end{aligned}$$

Les déplacements isotopiques résiduels sont identiques dans les deux raies. Ce résultat peut être rapproché des résultats théoriques obtenus

à l'aide de calculs Hartree-Fock relativistes pour la densité électronique au centre du noyau [83] . Ces calculs ont montré que les effets de volume dans les deux raies D_1 et D_2 diffèrent de moins de 1% . On peut en conclure que l'effet de masse spécifique est égal, aux bornes d'erreur près, pour les deux raies D_1 et D_2 .

Le résultat que nous avons obtenu pour la mesure de la constante hyperfine $A(4^2P_{1/2})$ de l'isotope ^{39}K corrobore la mesure précédente effectuée au C.E.R.N. par une méthode complètement différente. Ces deux résultats semblent donc infirmer définitivement la valeur jusqu'ici admise donnée dans la référence [78] .

Pour terminer ces quelques remarques, on peut dire que la technique qui vient d'être décrite nous a permis d'effectuer des mesures de fréquences très précises, à quelques centaines de KHz près. Cette précision est comparable à la précision de la technique de croisement de niveaux qui est utilisée pour déterminer les constantes de structure hyperfine des niveaux excités. Le même niveau de précision est atteint aussi par les mesures de battements de fréquence entre deux faisceaux issus de lasers à colorant [83] , [84] .

On peut néanmoins faire remarquer qu'ici, nous atteignons le même degré de précision avec un appareillage quelque peu moins complexe et en utilisant un seul laser à colorant.

Partie III

DETECTION DES RESONANCES OPTIQUES PAR
POMPAGE OPTIQUE ET SELECTION MAGNE-
TIQUE A L'AIDE D'UN CHAMP INHOMOGENE:
APPLICATION A L'ETUDE EN LIGNE DES
DES TRANSITIONS OPTIQUES DU FRANCIUM

I. INTRODUCTION

La méthode de détection des résonances optiques par pompage optique suivi d'une déflexion magnétique que nous abordons dans cette partie, a déjà montré toute son efficacité dans l'étude systématique de longues chaînes d'isotopes radioactifs d'alcalins tels que Sodium, Césium, Rubidium et Potassium 67, 68, 71, 85, 86 .

Les résultats obtenus sur ces éléments ont paru assez encourageants pour entreprendre l'étude du plus lourd des alcalins, le Francium. Celui-ci occupe une place particulière puisque, jusqu'alors, parmi les éléments naturels les plus lourds, il était le seul pour lequel aucune transition optique n'avait jamais pu être observée.

Depuis sa découverte en 1939, par M. Perey [87], plusieurs tentatives d'observations d'une transition optique de cet élément avaient échoué. Il faut remarquer, en effet, que l'isotope le plus "stable", ^{223}Fr , qui correspond à l'isotope naturel, a une durée de vie d'à peine 22 minutes et qu'il provient de la décroissance par radioactivité α , dans une proportion faible (1,4 %) de ^{227}Ac . Le Francium n'existe donc qu'à l'état de traces dans la nature et doit donc être produit artificiellement.

Les expériences précédentes utilisaient pour la plupart, les méthodes classiques de spectroscopie optique en cellule. Or, même dans une réaction nucléaire, la quantité de Francium produite par bombardement d'une cible d'Uranium (réaction de spallation), reste faible ; les atomes de Francium emprisonnés à l'intérieur d'une cellule, se trouvent mélangés aux atomes de plusieurs autres espèces radioactives, beaucoup plus abondantes. En spectroscopie d'émission, les spectres enregistrés sont alors si imbriqués qu'il est vain d'espérer attribuer une de ces raies à l'élément Francium.

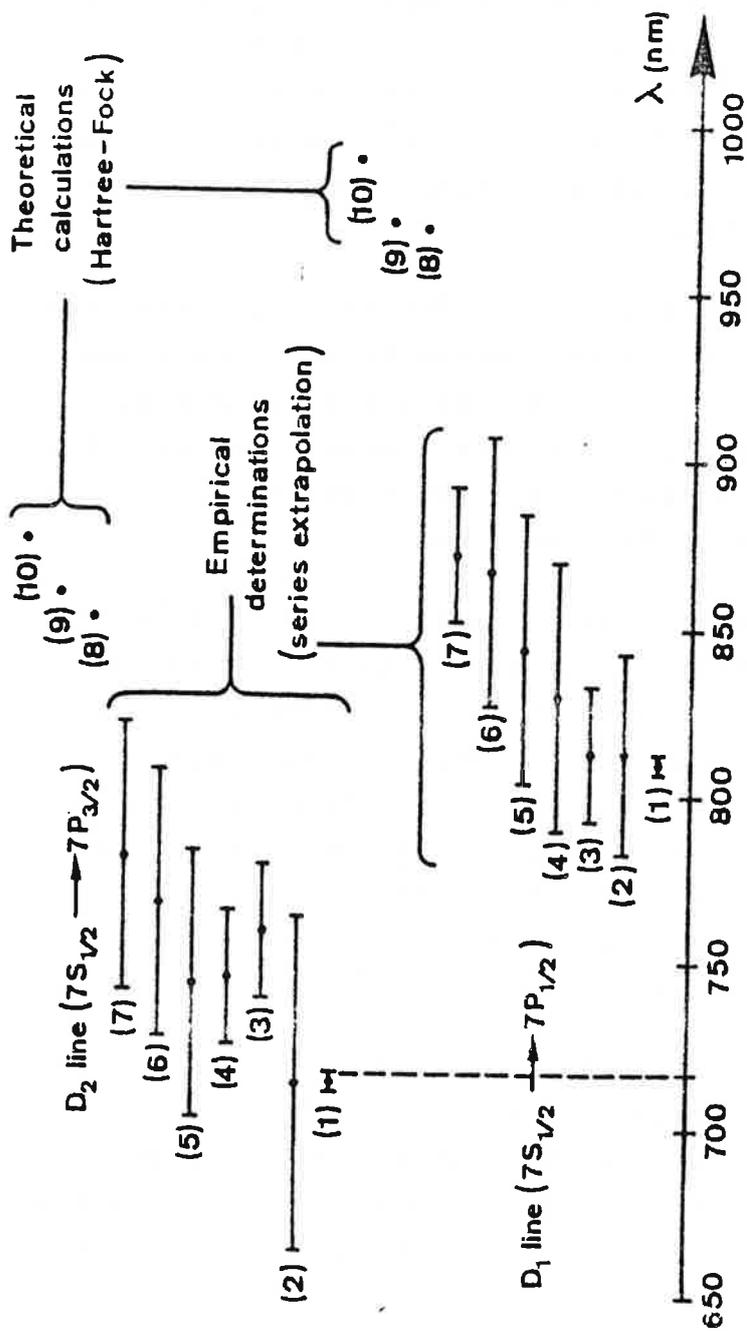


Figure 1

Prédictions théoriques de la position des raies D_1 et D_2 du francium.

- (1) Réf. [89]
- (4) Réf. [92]
- (7) Réf. [95]
- (10) Réf. [98]

- (2) Réf. [90]
- (5) Réf. [93]
- (8) Réf. [96]

- (3) Réf. [91]
- (6) Réf. [94]
- (9) Réf. [97]

De plus, le Francium est chimiquement très actif et il est rapidement absorbé par les parois de la cellule, sa densité dans le volume actif décroît donc rapidement au cours du temps, ce qui rend les méthodes de spectroscopie par absorption aussi inadaptées.

Il était donc apparu que seules les méthodes d'investigations "en ligne", derrière les accélérateurs de particules, pourraient s'avérer fructueuses. La possibilité d'une telle expérience s'est présentée en 1978 au C.E.R.N., derrière le séparateur d'isotopes ISOLDE, avec la mise au point d'une source d'atomes de Francium isotopiquement et chimiquement purs, produits en abondance relativement suffisante (10^8 atomes/seconde) par une réaction de spallation de l'Uranium bombardé par un faisceau de protons à 600 MeV [88].

La limite de détection de notre méthode expérimentale de spectroscopie laser sur jets d'atomes radioactifs s'étant avérée être de l'ordre de 10^5 atomes/seconde, on pouvait espérer entreprendre cette expérience avec quelques chances de succès.

La première étape dans ce programme de spectroscopie optique sur les isotopes de Francium consistait évidemment à localiser les raies de résonance. La figure 1 rassemble les différentes prédictions disponibles dans la littérature avec leurs barres d'incertitude pour la valeur des longueurs d'ondes des deux premières raies de résonance D_1 et D_2 . Ces prédictions résultent de calculs théoriques ab-initio ou d'extrapolations semi-empiriques. Les points (1) et (2) correspondent à des extrapolations à partir des derniers éléments de la série des alcalins, par comparaison avec les séries du Cuivre, de l'Argent et de l'Or. Les autres points sont obtenus par extrapolation du défaut quantique en suivant une séquence isoélectronique, le long de la série des alcalins ou des alcalino-terreux ionisés une fois.

Les premières recherches expérimentales ont visé à la détermination de la raie de résonance D_2 , correspondant à la transition hyperfine $7^2S_{1/2} \rightarrow 7^2P_{3/2}$. Le domaine à explorer s'étendait de 700 à 800 nm comme le montre la figure 1. Ce domaine spectral peut être entièrement couvert par la fluorescence d'un colorant organique, l'Oxazine 725. Il n'en reste pas moins que l'utilisation d'un laser à colorant monomode pour explorer une telle étendue spectrale, en un temps raisonnable, est complètement exclue.

Dans une première étape, l'expérience a donc consisté à localiser la résonance en utilisant un système de balayage à basse résolution. Ce système était principalement constitué par un laser à colorant continu fonctionnant en régime multimode. Après avoir localisé cette raie, il devenait possible d'entreprendre une étude à haute résolution qui a permis de mesurer les structures hyperfines et les déplacements isotopiques de plusieurs isotopes. Les expériences sont décrites dans [69] et [99]. Elles ont abouti aux valeurs :

$$\lambda(D_2) = 717.97 \pm 0.01 \text{ nm}$$

pour la longueur d'onde de la raie D_2 dans le vide,

$$\text{et } \Delta\nu_{\text{h.f.s}} \text{ compris entre 39 GHz et 46 GHz}$$

pour la structure hyperfine du fondamental des isotopes 208 à 213.

D'autres expériences restaient alors à entreprendre pour déterminer la longueur d'onde de la raie D_1 correspondant à la transition $7^2S_{1/2} \rightarrow 7^2P_{1/2}$.

Les tentatives destinées à localiser cette raie par une technique identique à celle qui avait permis la découverte de la raie D_2 ont toutes échoué. En effet, la solution consistant à utiliser un laser à colorant multimode fonctionnant en régime continu est assez incertaine : le balayage en fréquence du peigne de modes n'assure pas nécessairement le recouvrement systématique de tout le domaine spectral exploré.

Nous avons donc choisi de le remplacer par un laser à colorant continu pompé de façon synchrone par un laser ionique fonctionnant en modes bloqués. Le reste du dispositif expérimental est inchangé. Nous verrons que l'utilisation de ce laser permet d'explorer un long domaine de fréquence, de façon uniforme et dans de bonnes conditions de stabilité d'intensité lumineuse.

Dans une première partie, nous rappellerons très brièvement le principe de la méthode de détection des résonances optiques par pompage optique et sélection magnétique. Cette méthode est décrite en détail dans la thèse de J.L. Vialle [100]. Nous présenterons ensuite le dispositif expérimental et plus particulièrement la source laser qui a été mise au point pour cette expérience.

Nous donnerons enfin les résultats des mesures expérimentales qui ont abouti à la détermination de la longueur d'onde de la raie D_1 du Francium.

II. RAPPELS SUR LE PRINCIPE DE LA METHODE

Les isotopes radioactifs sont produits en bombardant une cible avec un faisceau de protons d'énergie convenable fourni par un accélérateur. Après accélération et tri en masse les ions radioactifs produits sont neutralisés ; ils sortent ensuite du neutraliseur sous forme d'un jet atomique thermique. Les atomes de ce jet interagissent avec le rayonnement fourni par le 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 après qu'un certain nombre de rappels auront été faits.

A. TRANSITIONS ETUDIEES

Les expériences décrites dans ce chapitre ont été effectuées sur la raie de résonance D_1 ($7^2S_{1/2} \rightarrow 7^2P_{1/2}$) des isotopes de l'atome de Francium. L'état fondamental du Francium ($7^2S_{1/2}$) est un état paramagnétique ($J \neq 0$). Quand 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 et de l'état excité.

La figure 2 représente le schéma des niveaux d'énergie (niveaux hyperfins) mis en jeu dans la transition étudiée

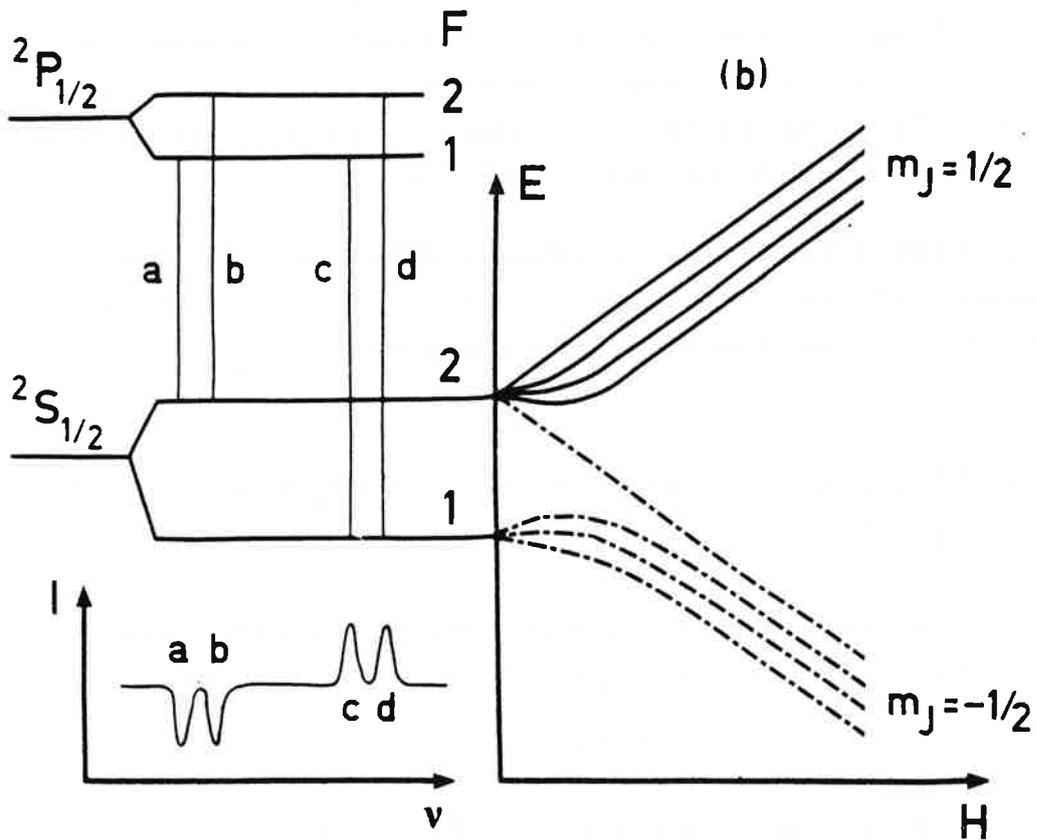


Figure 2

Niveaux d'énergie hyperfins dans la raie D_1 pour un isotope I non nul et $J=1/2$. Comportement des sous-niveaux Zeeman en champ magnétique.

ainsi que les composantes hyperfines de la transition D_1 pour un isotope de spin nucléaire I non nul.

Les atomes du jet atomique sont soumis au cours de leur trajet à des champs magnétiques dont l'intensité peut varier d'une fraction de gauss, dans la région d'interaction avec la lumière, à 9000 gauss dans l'aimant de hexapolaire. Les énergies des niveaux peuvent être calculés exactement en fonction du champ magnétique. Dans le cas $J=\frac{1}{2}$, elles sont données par la formule de Breit-Rabi [8].

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

B. DEFLEXION DES ATOMES DANS UN CHAMP MAGNETIQUE IN-HOMOGENE

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

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

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

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

$$\vec{F} = \mu_e.\vec{\nabla}B$$

Dans les cas où à cause de l'interaction hyperfine les fonctions $W(B)$ ne sont plus linéaires en B , on définit une projection effective du moment magnétique $\mu_{eff} = -\frac{\partial W}{\partial B}$ qui cette fois dépend de B .

La figure 3 donne l'allure des fonctions $\mu_{eff}(B)$ pour tous les sous-niveaux de l'état fondamental d'un atome de moment magnétique $\mu_I > 0$ et de spin $I=\frac{3}{2}$.

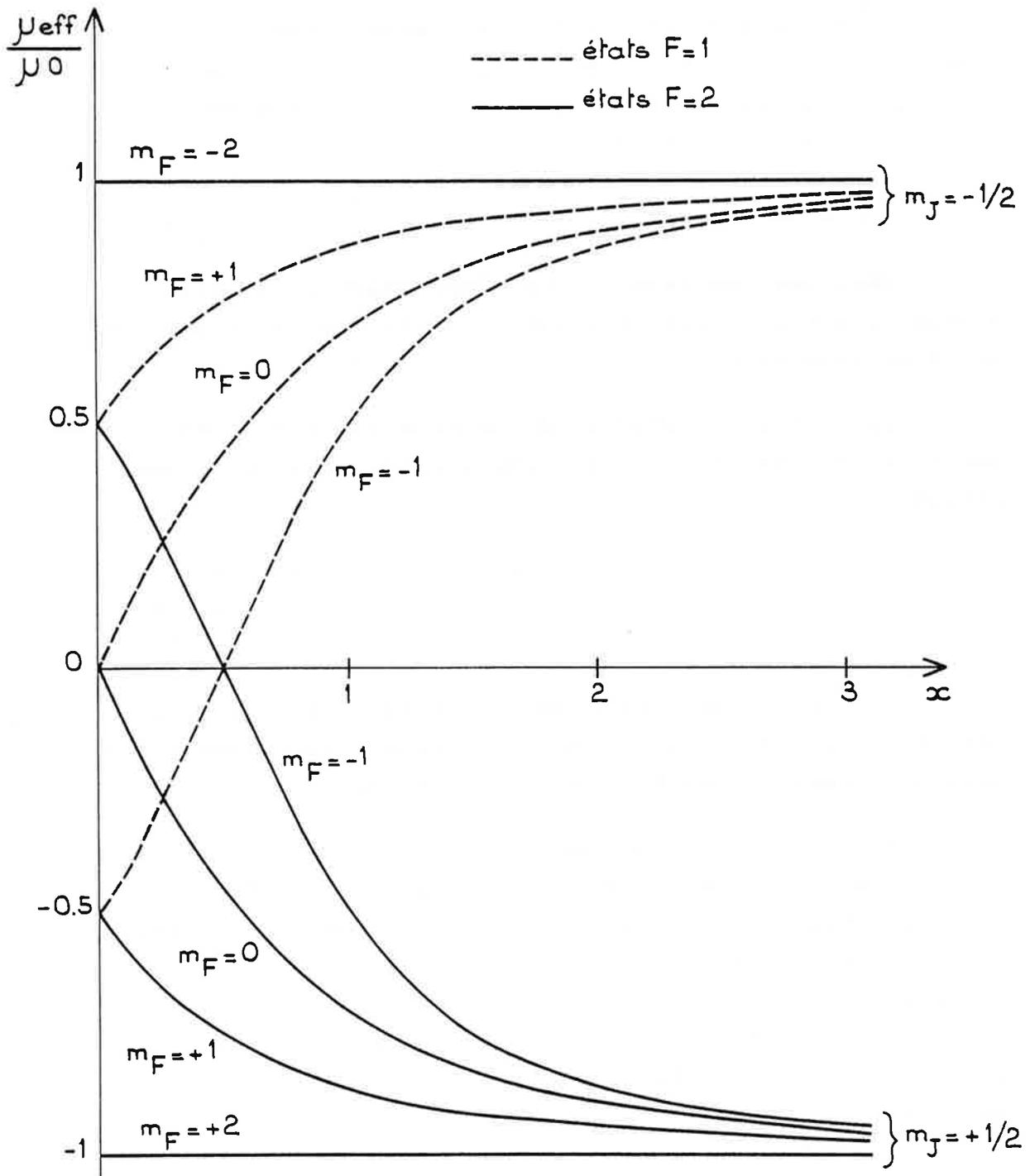


Figure 3

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

Comme pour la figure 2, les courbes donnant μ_{eff} en fonction de B se rassemblent en deux groupes lorsque le champ appliqué est fort, et pour chacun de ces groupes, μ_{eff} est à peu près constant et indépendant de B ($\mu_{\text{eff}} \approx \pm \mu_0$). Chaque groupe de sous-niveaux se caractérise par une valeur de m_J : $m_J = -\frac{1}{2}$ pour $\mu_{\text{eff}} = +\mu_0$ et $m_J = +\frac{1}{2}$ pour $\mu_{\text{eff}} = -\mu_0$.

Dans les conditions d'un champ magnétique fort, l'atome subit une force qui est proportionnelle au gradient du champ magnétique :

i) $\vec{F} = \mu_0 \cdot \vec{\nabla} B$ pour un atome dans un sous-niveau tel que $m_J = -\frac{1}{2}$. Ces atomes sont donc attirés vers les champs élevés.

ii) $\vec{F} = -\mu_0 \cdot \vec{\nabla} B$ pour un atome dans un sous-niveau pour lequel $m_J = +\frac{1}{2}$. Ces atomes sont repoussés par les champs élevés.

L'application d'un champ magnétique inhomogène au jet atomique a donc pour effet de séparer spatialement les atomes en fonction de leur valeur de m_J en champ fort.

On peut faire remarquer que ces conclusions ne sont valables que dans le cas d'un champ magnétique "fort" et que pour des champs plus faibles, la situation est plus complexe. Dans ce cas, en effet, μ_{eff} ne peut plus être considéré comme constant et le calcul des trajectoires des atomes dans le champ doit être effectué pour chaque sous-niveau Zeeman, ce qui complique singulièrement l'interprétation des effets observés.

C. PRINCIPE DE LA DETECTION DE LA RESONANCE OPTIQUE PAR POMPAGE OPTIQUE SUIVI D'UNE DEVIATION MAGNETIQUE

La figure 4 présente le schéma de principe de l'expérience et l'allure des signaux observés pour la raie D_1 , dans le cas $I = \frac{3}{2}$, $\mu_I > 0$.

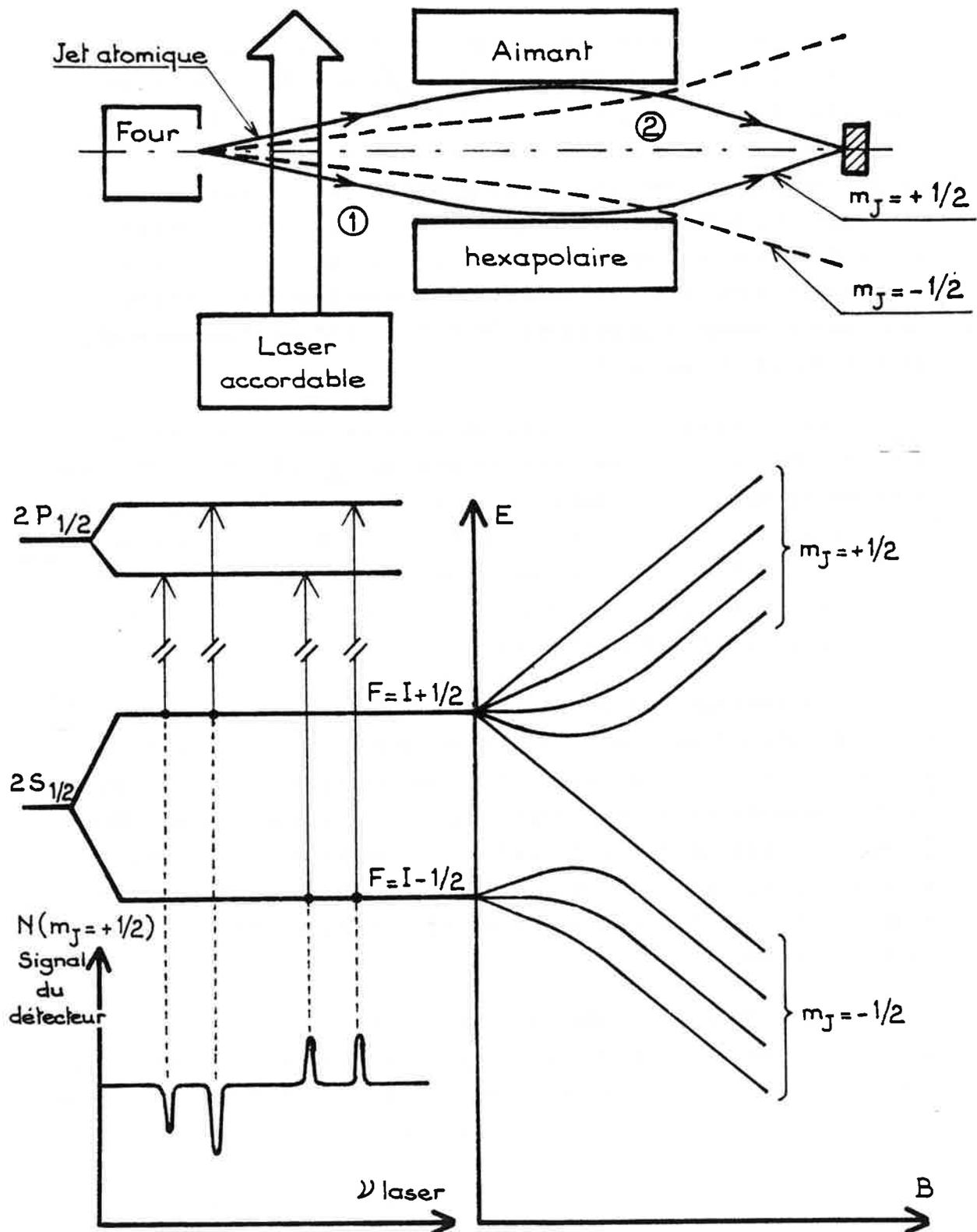


Figure 4 : Schéma de principe de l'expérience et allure des signaux observés pour la raie D_1 , dans le cas $I = \frac{3}{2}$; $\mu_I > 0$.

Le jet d'atomes passe successivement à travers deux régions (1) et (2). Dans la région (1) où règne un champ magnétique très faible, les atomes interagissent avec le rayonnement issu d'un laser à colorant. Le faisceau lumineux et le jet atomique sont orthogonaux pour s'affranchir de l'effet Döppler. 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 dans la région (2) où ils sont soumis à un champ magnétique intense et inhomogène. L'aimant hexapolaire a pour effet de focaliser les atomes se trouvant dans les états $m_J = +\frac{1}{2}$ et de défocaliser les atomes se trouvant dans les états $m_J = -\frac{1}{2}$. Le détecteur ne reçoit donc que les atomes qui se trouvent dans un état $m_J = +\frac{1}{2}$ 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 : un atome, dans l'état $|F, m_F\rangle$ initialement, 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 le long des courbes d'énergie tracées en fonction de B en figure .

La modification de population sur les états $|F, m_F\rangle$, introduite par le pompage optique hyperfin, se transmet donc aux états $|m_I, m_J\rangle$. En absence de résonance optique et de pompage hyperfin, la moitié des atomes du jet se trouve dans l'état magnétique caractérisé par $m_J = +\frac{1}{2}$ en champ fort. Lorsque le jet est éclairé à résonance, cette proportion est modifiée, ce qui entraîne une variation du signal reçu sur le détecteur. A la résonance avec la lumière, les transitions observées apparaissent donc sous la forme de signaux positifs ou négatifs sur un fond constant.

L'amplitude et le signe de cette variation dépendent de la transition sur laquelle la lumière est accordée, comme on peut le voir sur la figure 4.

On peut remarquer que tous les niveaux Zeeman du niveau hyperfin $F = I - \frac{1}{2}$ donnent en champ fort des niveaux $m_J = -\frac{1}{2}$. En revanche, parmi les sous-niveaux Zeeman du niveau $F = I + \frac{1}{2}$, le niveau $m_F = -(I + \frac{1}{2})$ correspond à $m_J = -\frac{1}{2}$ alors que tous les autres aboutissent à $m_J = +\frac{1}{2}$.

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 unes par rapport aux autres.

Le sous-niveau $F = I + \frac{1}{2}$, $m_F = -(I + \frac{1}{2})$ se comportant en champ fort d'une façon totalement différente par rapport aux autres sous-niveaux Zeeman du niveau $F = I + \frac{1}{2}$, on pourra tirer parti du pompage Zeeman pour renforcer l'amplitude d'un signal par un choix convenable de la polarisation du laser.

La figure 5 montre le comportement de l'amplitude des signaux reçus par le détecteur suivant la polarisation σ^+ ou σ^- de la lumière laser [100]. Ces courbes ont été calculées, une fois de plus, pour un isotope de spin $I = \frac{3}{2}$, pour plus de simplicité dans l'exposé. On constate que chaque signal optique tend asymptotiquement vers une valeur limite lorsque la puissance lumineuse W croît. Il y a donc pour chaque composante étudiée une valeur optimale de cette puissance. Au-delà de cette valeur, une augmentation de W produira un élargissement du signal sans augmentation de son amplitude. Les plages de réglage optimal de la puissance lumineuse sont représentées par les zones hachurées de la figure 5.

En pratique, il existe toujours une possibilité de réglage satisfaisant pour toutes les composantes de la raie, à la fois.

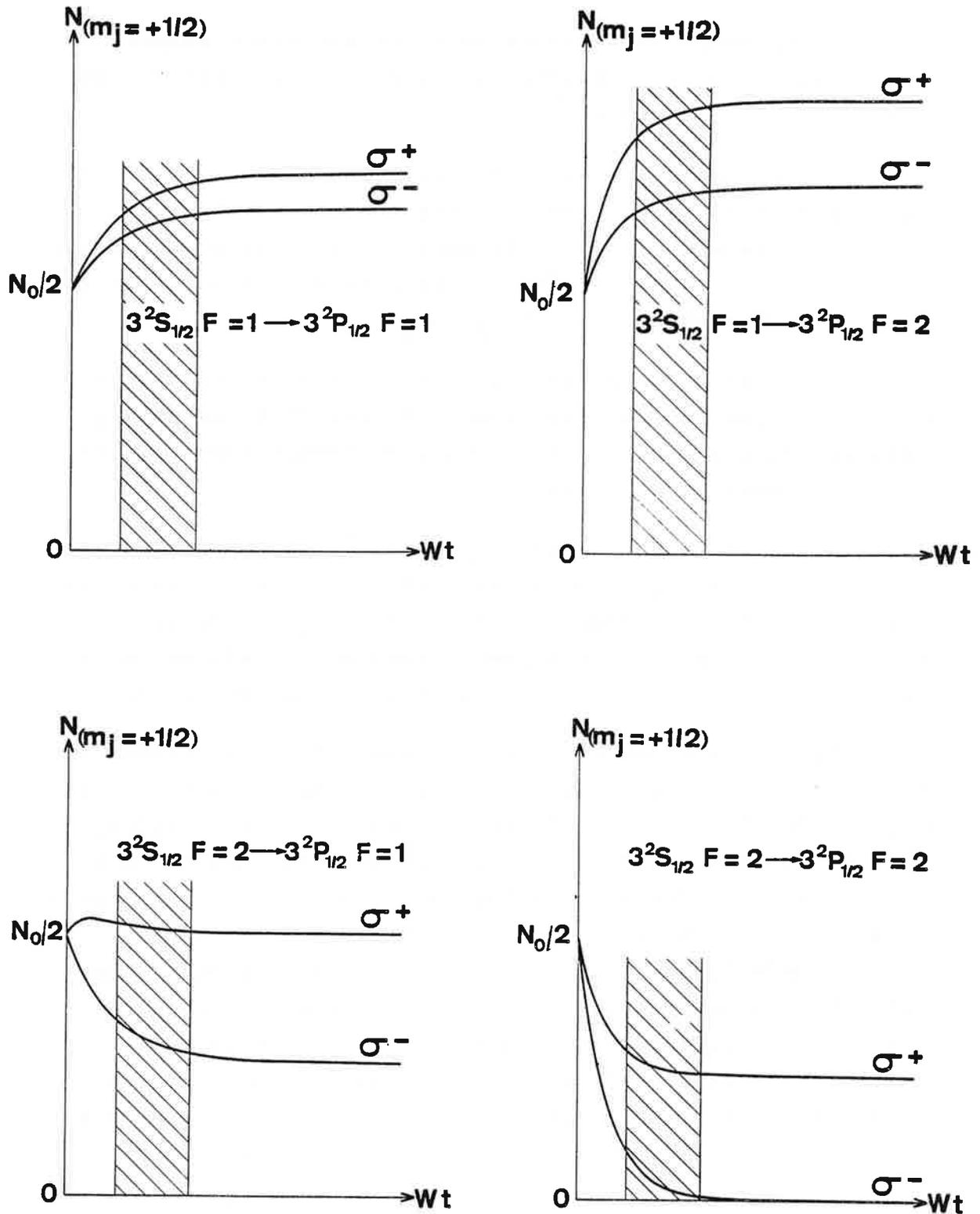


Figure 5

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

De l'observation des courbes reproduites sur cette figure, on peut conclure que :

- parmi les quatre composantes hyperfines de la raie D_1 , les deux composantes qui font intervenir le niveau hyperfin $F = I + \frac{1}{2}$ conduisent à des signaux négatifs ; les deux autres conduisent à des signaux positifs ;

- le choix de la polarisation étant limité à σ^+ et σ^- (le dispositif expérimental excluant la possibilité d'une excitation π), il est préférable, du point de vue de l'amplitude des signaux, de choisir une polarisation σ^+ pour les signaux positifs et σ^- pour les signaux négatifs.

D. VALIDITE DE L'APPROXIMATION DU CHAMP FORT

Les conclusions précédentes reposent sur l'approximation d'un champ magnétique "fort". Le champ magnétique est dit fort lorsqu'il découple totalement les moments angulaires \vec{I} et \vec{J} , ou, en d'autres termes, lorsque l'écart d'énergie dû à l'effet Zeeman dans le fondamental est plus large que la structure hyperfine. L'intensité maximale du champ magnétique sur les pièces polaires de l'aimant utilisé dans notre expérience est égale à 9000 gauss. Pour rester dans l'approximation d'un champ fort, l'écart de structure hyperfine ne doit pas excéder 25 GHz.

En fait, les premières expériences menées sur le Francium, pour la détermination de la raie D_2 , ont montré que la structure hyperfine des différents isotopes est de l'ordre de 40 GHz. Dans le cas du Francium, le champ magnétique appliqué correspond donc à un champ intermédiaire. Les atomes vont donc avoir un comportement différent suivant le sous-niveau Zeeman qu'ils occupent.

Seuls les atomes correspondant à $m_F = \pm(I + \frac{1}{2})$ ont un moment magnétique indépendant du champ ($\mu = \pm\mu_0$), comme on peut le voir sur la figure 3. On peut noter par exemple que pour les atomes appartenant à certains niveaux, la force qu'ils subissent change de signe et s'annule pour une certaine valeur de B ($\mu_{\text{eff}} = 0$).

Il en résulte que l'analyse par l'aimant hexapolaire de l'orientation des moments magnétiques par pompage hyperfin est moins efficace ; le signal reçu par le détecteur sera donc moins fort que dans le cas du découplage total de \vec{I} et \vec{J} . Toutefois, même avec un champ intermédiaire, le pompage optique Zeeman avec une lumière convenablement polarisée reste efficace grâce au comportement indépendant de B des sous-niveaux Zeeman $m_F = \pm(I + \frac{1}{2})$.

C'est ce pompage Zeeman qui est utilisé comme mécanisme d'orientation des moments magnétiques atomiques dans la recherche de la transition $7^2S_{1/2} \rightarrow 7^2P_{1/2}$.

III. DISPOSITIF EXPERIMENTAL

Une vue d'ensemble du dispositif expérimental est représentée en figure 6 .

Les isotopes radioactifs sont produits dans des réactions de spallation d'une cible d'Uranium bombardée par le faisceau de protons à 600 MeV délivré par le synchrocyclotron du C.E.R.N. Les atomes sont séparés en masse par le séparateur d'isotopes ISOLDE placé en ligne derrière l'accélérateur ; on obtient en sortie un faisceau d'ions monochargés, d'énergie égale à 60 keV. Ce faisceau d'ions est converti en un jet d'atomes neutres thermiques dans un dispositif spécialement conçu à cet effet.

Le jet d'atomes neutres interagit à angle droit avec le faisceau d'un laser à colorant accordable. Le pompage optique qui en résulte modifie la distribution des populations dans les sous-niveaux Zeeman de l'état fondamental. Cette modification de l'état magnétique des atomes est détectée après la traversée d'un aimant hexapolaire ; les atomes correspondant à l'état magnétique caractérisé par le nombre quantique $m_J = +\frac{1}{2}$ sont focalisés par l'aimant sur l'entrée d'un dispositif destiné à les ioniser. A la sortie de l'ioniseur, on obtient un faisceau d'ions portés à une énergie de 10 keV qui sont triés par un spectromètre de masse et comptés par un multiplicateur d'électrons.

L'ensemble du dispositif a déjà été décrit maintes fois [3,6,7,71,100]. Nous nous contenterons de rappeler le principe de fonctionnement des éléments les plus importants du dispositif expérimental. En revanche, nous développerons la partie concernant le système laser qui a été spécialement mis au point pour réaliser cette expérience destinée à mettre en évidence la raie D_1 du Francium. Nous terminerons ensuite sur une brève description du système d'acquisition des signaux.

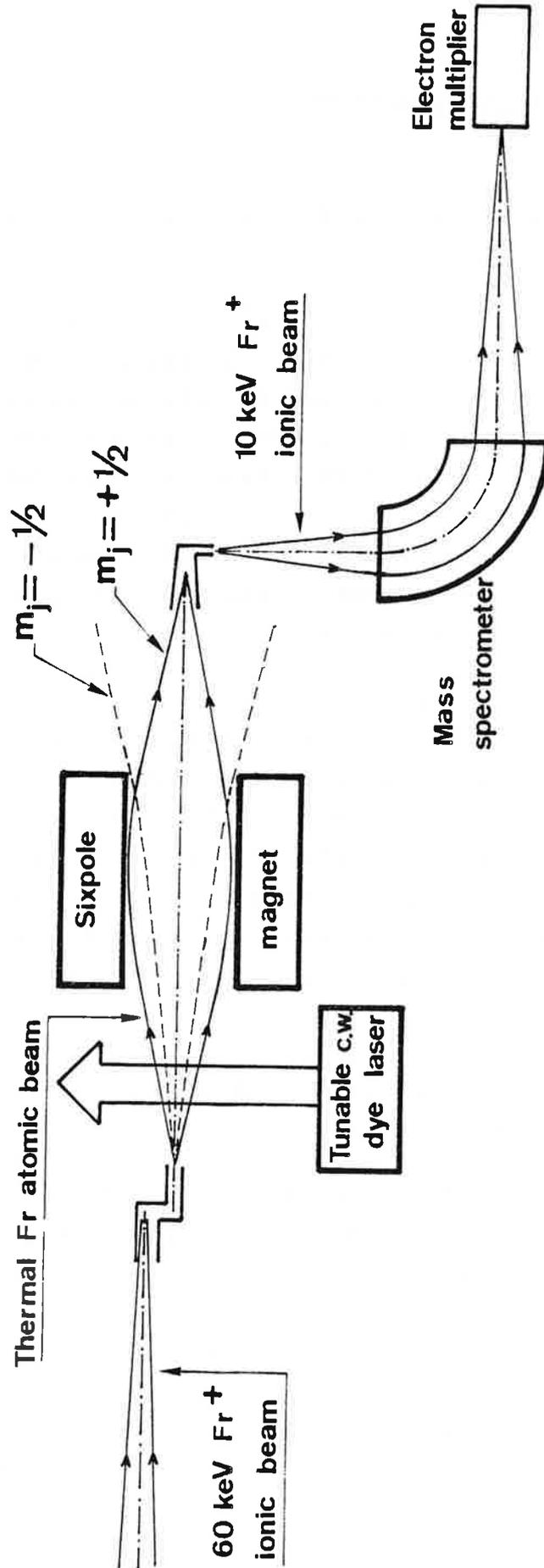


Figure 6 : Vue d'ensemble du dispositif expérimental mis en œuvre dans l'expérience.

A. PRODUCTION DU JET ATOMIQUE DE FRANCIUM

Le séparateur d'isotopes ISOLDE du C.E.R.N. fournit un jet d'ions monochargés de Francium accélérés sous une tension de 60 kV. L'intensité de ce faisceau peut atteindre 10^8 atomes par seconde.

Les ions incidents sont implantés sur une surface de Tantale, à l'intérieur du dispositif représenté en figure 7. L'ensemble de ce dispositif est chauffé à une température de 1200°C environ. Les ions sont alors évaporés sous forme d'ions thermiques. Ils sont guidés par le champ électrique créé par le courant de chauffage vers la sortie du dispositif et traversent une région tubulaire constituée de feuilles de Tantale recouvert d'Yttrium. A cause du travail d'extraction très bas de l'Yttrium, les ions de Francium sont facilement neutralisés à cet endroit. Une tension continue de 200 V environ crée un champ électrique qui confine les ions à l'intérieur du dispositif. On s'assure ainsi que seuls les atomes neutres peuvent être évaporés hors du tube de sortie.

On a estimé l'efficacité de la neutralisation du dispositif à partir de considérations géométriques : pour un temps de désorption de 150 ms, plus de 80 % du faisceau d'ions incident est transformé en atomes neutres de vitesse thermique.

B. LE JET ATOMIQUE. REGION D'INTERACTION AVEC LA LUMIERE

Les isotopes de Francium neutralisés s'échappent du dispositif précédent pour former un jet d'atomes thermiques dans une enceinte où règne un vide poussé. Le jet atomique et le faisceau laser se propagent dans des directions orthogonales. La région d'interaction est entourée par un blindage magnétique refroidi à l'azote liquide (figure 8).

Son rôle est double :

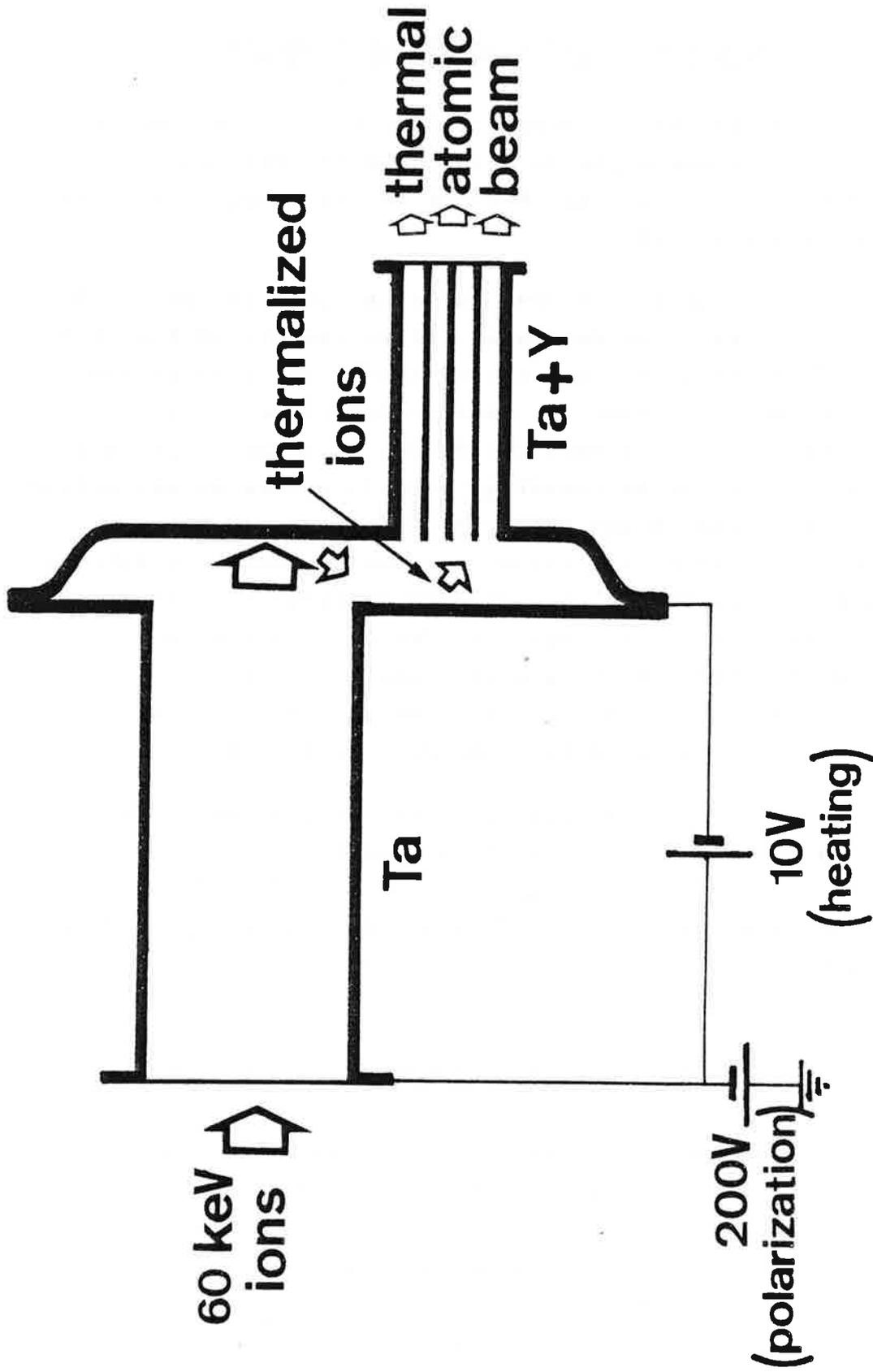


Figure 7 : Dispositif de neutralisation du jet d'ions incident à 60 keV ; on obtient en sortie un jet d'atomes neutres thermiques .

D'une part, il impose une première limitation des dimensions géométriques du jet atomique, les atomes émis dans des directions trop écartées de l'axe du jet venant se condenser sur la surface froide. La collimation définitive du jet atomique sera en fait déterminée par les dimensions de l'entrefer de l'aimant hexapolaire.

D'autre part, il protège la zone d'interaction des champs magnétiques alternatifs qui pourraient être produits par le courant de chauffage du dispositif de neutralisation. Il annule aussi, dans la zone d'interaction tous les champs parasites.

Deux bobines Helmholtz de petites dimensions, situées dans la cavité blindée, permettent de créer un champ magnétique faible (~ 4 gauss), parallèle au faisceau laser et bien homogène. Ce champ détermine l'axe de quantification dans la région d'interaction où a lieu le pompage optique sur les sous-niveaux Zeeman du fondamental.

Après l'excitation lumineuse, les atomes du jet, dont la répartition entre les sous-niveaux Zeeman du fondamental a été modifiée par le pompage optique, se dirigent vers l'entrefer de l'aimant. L'aimant analyse cette variation de population pourvu que l'évolution de l'état magnétique de l'atome se fasse de façon adiabatique entre la région d'interaction (champ faible) et la région d'analyse (champ fort).

Pour celà, il faut éviter que le champ magnétique s'annule ou soit très faible entre la zone d'interaction avec la lumière et l'aimant hexapolaire afin de prévenir toute possibilité de transitions non adiabatiques (transitions de Majorana). Il ne faut pas non plus que la direction du champ magnétique change trop brusquement. Le champ créé par les bobines de Helmholtz assure cette "continuité" du champ vu par les atomes jusqu'au voisinage de l'aimant.

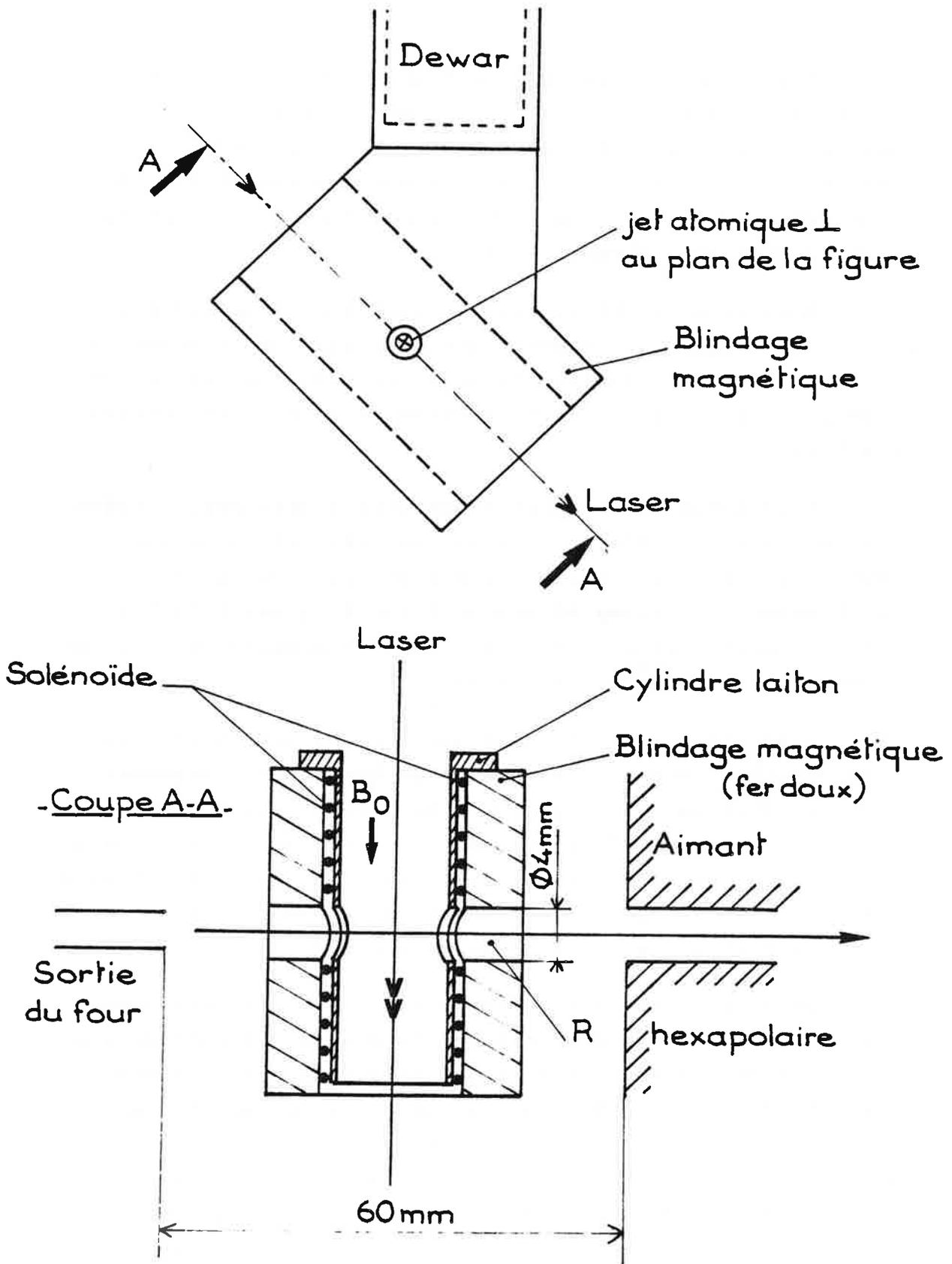


Figure 8

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

C. L'AIMANT HEXAPOLAIRE

Le champ inhomogène qui effectue la sélection spatiale des états magnétiques est créé dans l'entrefer d'un aimant à 6 pôles. Il est constitué en fait par deux aimants commerciaux de 8,6 cm chacun, placés en série. Le diamètre de l'entrefer est de 3,2 mm et le champ maximum sur les pièces polaires est de 9300 gauss.

Les aimants $2n$ -polaires ($n > 1$) présentent un axe de symétrie et ont des propriétés focalisatrices pour les états $m_J = +\frac{1}{2}$ et défocalisatrices pour les états $m_J = -\frac{1}{2}$. Les états $m_J = +\frac{1}{2}$ sont mieux focalisés par les aimants hexapolaires ($n=3$) car la loi de force qui agit sur les atomes permet la formation d'une image [100]. C'est ce qui explique que le choix s'est porté sur ce type d'aimant.

D. LE SPECTROMETRE DE MASSE

Les atomes d'état magnétique $m_J = +\frac{1}{2}$ pénètrent dans un tube de Rhénium coudé et chauffé à 1700 K qui se situe sur l'axe de symétrie de l'aimant. Les atomes de Francium sont ionisés par ionisation de surface à l'intérieur de ce tube. Les ions ainsi produits sont guidés par le champ électrique créé par le courant de chauffage du tube vers la sortie du tube qui constitue la fente source d'un spectromètre de masse (figure 6). On peut noter ici que l'ionisation de surface étant un phénomène caractéristique des alcalins à cause de leur faible potentiel d'ionisation, parmi tous les atomes produits dans le four seuls les isotopes d'atomes alcalins seront ionisés et pénétreront dans le spectromètre de masse sous forme d'ions. Tous les autres atomes de même masse que ces alcalins sont donc ainsi éliminés.

Le spectromètre de masse permet ensuite de choisir, parmi tous les isotopes de Francium issus de l'ioniseur, un isotope donné.

E. LE DETECTEUR

Le comptage des ions émergeant du spectromètre de masse est effectué par un multiplicateur d'électrons. Le flux d'ions de Francium qui atteint finalement ce multiplicateur est d'environ 10^3 ions par seconde, lorsque le laser n'est pas résonnant avec une transition optique. Ceci correspond à un taux de transmission de l'ordre de 10^{-5} pour tout le dispositif expérimental.

Les expériences précédentes avaient montré que les ions de Francium implantés dans la première dynode du multiplicateur d'électrons produisent un fond parasite important dû à leur décroissance radioactive. L'accumulation de Francium contaminerait donc rapidement le multiplicateur d'électrons. Pour éviter cette contamination, un détecteur spécial a été construit. La première dynode de ce détecteur est constituée par un ruban de Mylar aluminisé. Les électrons secondaires réémis sont accélérés et déviés par le champ d'un petit aimant en direction d'un multiplicateur d'électrons conventionnel en Cu-Be. Le ruban de Mylar est déroulé automatiquement, ce qui permet de maintenir l'activité de la zone utile à un niveau négligeable. On réduit de cette façon le bruit de fond causé par la radioactivité sur le multiplicateur d'électrons à un niveau inférieur à 10 % du signal.

F. ACQUISITION DES SIGNAUX

Comme cela a été expliqué plus haut, les transitions observées n'apparaissent pas sur un fond nul, mais comme des résonances positives ou négatives par rapport à un courant d'ions moyen.

Il est donc nécessaire d'utiliser une procédure de normalisation pour s'affranchir des fluctuations de ce courant moyen dues essentiellement à l'irrégularité de la production d'atomes de Francium liée aux variations de l'intensité du

faisceau de protons issu de l'accélérateur.

C'est dans ce but que le faisceau laser est haché à la fréquence de 2 Hz par un modulateur mécanique, ce qui permet d'enregistrer en permanence deux signaux de détection pendant le balayage de la fréquence du laser : l'un est obtenu sans excitation laser, l'autre avec excitation laser. La soustraction des deux signaux permet de normaliser les intensités des résonances enregistrées.

Les deux signaux sont accumulés dans des compteurs différents. La durée d'acquisition des signaux varie entre 1 seconde et 10 secondes suivant les taux de production des atomes de Francium. Par exemple, le flux d'atomes de Francium correspondant à l'isotope 212 reçus par le détecteur, hors résonance, est à peine égal à 600 atomes par seconde. Or le nombre moyen de coups qui doivent être accumulés pour permettre une bonne statistique est de l'ordre de 2000, ce qui explique la longueur des durées de comptage.

Toutes les données sont ensuite transférées à un ordinateur et enregistrées sur bandes magnétiques.

G. LE SYSTEME LASER

Comme nous l'avons signalé dans la partie introductive, le domaine spectral à explorer pour rechercher la longueur d'onde de la raie D_1 est très vaste.

Une évaluation théorique récente, basée sur la méthode de Hartree-Fock relativiste et tenant compte de la mesure de la longueur d'onde de la raie D_2 a conduit à la valeur ΔE_{SF} pour l'écart de structure fine du niveau excité :

$$\Delta E_{SF}(7p \ ^2P_{3/2} - 7p \ ^2P_{1/2}) = 1655 \pm 33 \text{ cm}^{-1}$$

Cet écart permet de localiser la raie D_1 à

$$\lambda_{D_1} = 814,6 \pm 2,0 \text{ nm} \quad [01]$$

Une autre valeur calculée elle aussi ab-initio a conduit aux valeurs :

$$\Delta E_{SF} = 1534 \text{ cm}^{-1}$$

et par suite $\lambda_{D_1} = 812 \pm 10 \text{ nm}$ [102].

Le domaine à explorer s'étend donc de 810 nm à 820 nm.

Il est bien évidemment exclu d'explorer un si vaste domaine de longueurs d'ondes à l'aide d'un laser monochromatique. En effet, le faisceau d'ions d'ISOLDE est attribué pour chaque expérience pendant une durée limitée. Le taux de comptage des ions tombant sur le détecteur détermine la durée de l'enregistrement pour un élément spectral et définit ainsi le nombre maximal d'éléments spectraux qu'il est possible d'enregistrer pendant les temps de faisceau impartis.

Pour s'affranchir des durées d'enregistrements prohibitives, incompatibles avec ces temps de faisceau, il est nécessaire d'effectuer des balayages sur des domaines de longueurs d'onde relativement importants en des temps suffisamment courts. On est ainsi conduit à utiliser des sources laser à bande relativement large.

Nous avons choisi d'utiliser pour cette expérience un laser à colorant pompé de façon synchrone par un laser à Kr^+ fonctionnant en modes bloqués. Cette solution permet d'explorer simultanément et de façon uniforme une bande de fréquence assez large ($\sim 10 \text{ GHz}$) à l'aide de modes régulièrement espacés. De plus, outre qu'il permet une excitation uniforme en fréquence, ce type de laser à colorant fonctionne très au dessus de son seuil ce qui permet de balayer la fréquence d'oscillation moyenne sur un domaine spectral très étendu sans diminution de la puissance lumineuse. D'autre part, les inconvénients liés aux effets thermiques, qui détériorent la qualité optique des jets de colorant lorsqu'ils sont pompés de façon continue, sont minimisés lorsque le faisceau utilisé pour le pompage est pulsé.

C'est cette source laser que nous allons décrire à présent.

1) Principe du fonctionnement en modes bloqués

Un laser est constitué essentiellement par une cavité optique résonnante, formée par des miroirs, et un milieu amplificateur. Ce milieu amplificateur détermine approximativement la plage spectrale de fonctionnement du laser, mais ce sont les propriétés de la cavité qui définissent le mieux sa fréquence d'oscillation.

Chaque cavité résonnante est caractérisée par un grand nombre de modes d'oscillation appelés modes transverses parce qu'ils correspondent à différentes distributions du champ électrique perpendiculairement à l'axe de la cavité. Les fréquences propres attachées à chaque mode transverse (modes longitudinaux) sont distants de la quantité $\frac{c}{2L}$ où L est la longueur optique de la cavité et c la vitesse de la lumière. En utilisant des cavités de forme appropriée, il est possible d'obtenir une oscillation sur un seul mode transverse ; c'est, en général, celui qui correspond à l'ordre le plus bas et qui possède un profil d'intensité gaussien.

Si aucun autre procédé sélectif en fréquence n'est utilisé, la distribution spectrale de la lumière émise par le laser sera constituée par un peigne de fréquences régulièrement espacées de l'intervalle $\frac{c}{2L}$. Le nombre de fréquences susceptibles d'osciller est limité par l'enveloppe de la courbe de gain de largeur $\Delta\nu$, située au dessus du seuil du laser, seuil pour lequel le gain à l'intérieur du milieu amplificateur excède les pertes dans la cavité (figure 9.a).

L'émission laser étant constituée par un certain nombre de composantes spectrales, l'intensité lumineuse variera dans le temps suivant l'amplitude et les phases relatives de ces différentes composantes. Si rien n'est tenté pour fixer ces différents paramètres, des fluctuations aléatoires très

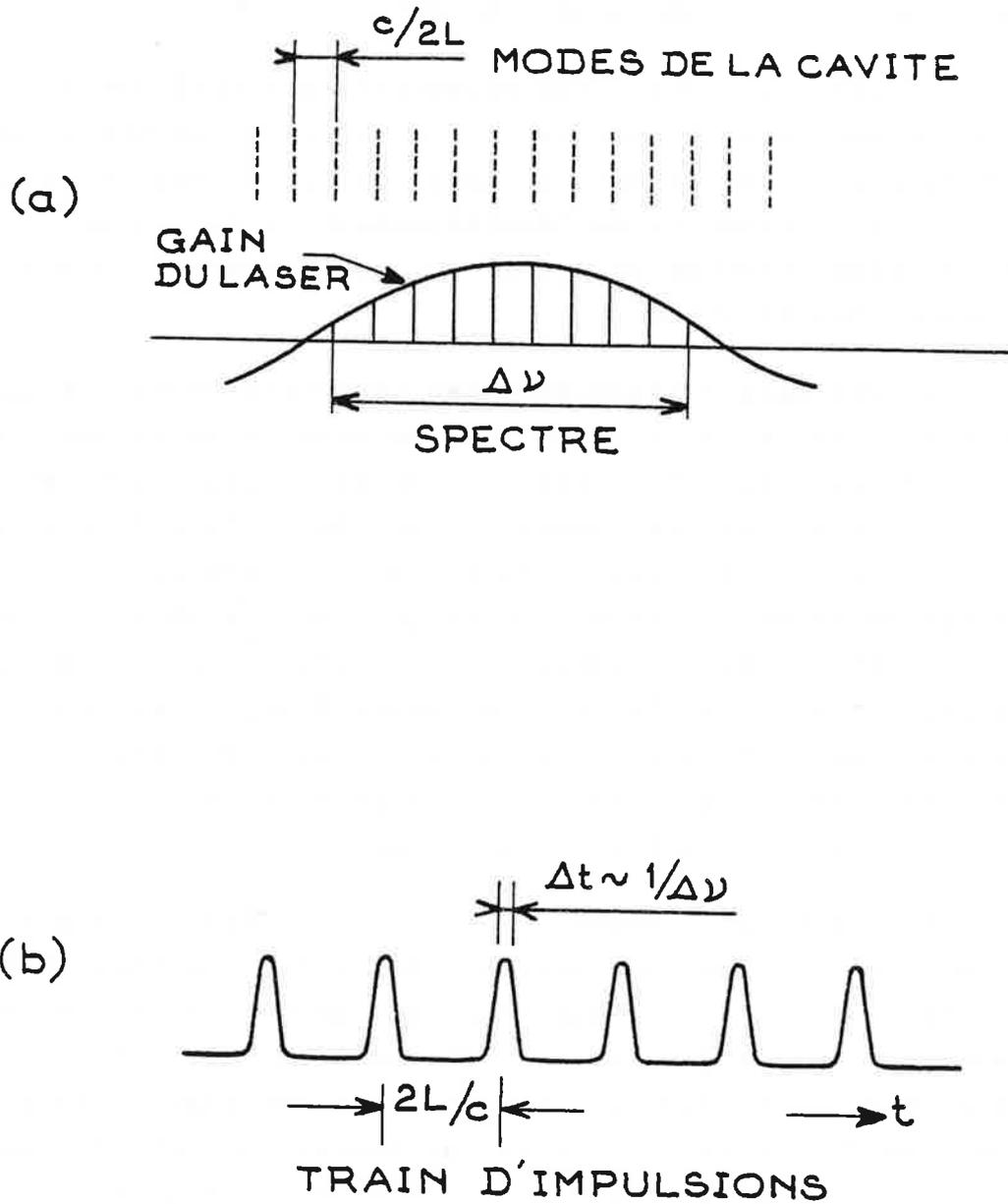


Figure 9

- a) Structure des modes longitudinaux dans un laser multimode.
 b) Train d'impulsions produit en sortie d'un laser à modes bloqués.

importantes affectent l'émission laser sur chaque mode pris individuellement même si la puissance moyenne reste relativement constante.

En revanche, si, par un certain procédé, on force les modes à osciller avec une amplitude et une phase relative fixes, l'émission laser pourra être décrite par une fonction du temps bien définie : le laser fonctionne alors en "modes bloqués".

Ce blocage des modes peut, par exemple, se traduire par une modulation très forte de l'amplitude en sortie, cette modulation produisant un train d'impulsions régulièrement espacées : la largeur temporelle Δt de ces impulsions est approximativement égale à l'inverse de la courbe de gain $\Delta \nu$ et leur périodicité T est égale à $2\frac{L}{c}$ (figure 9.b).

Dans la cavité résonnante, une période $T = \frac{2L}{c}$ correspond à la durée de l'aller-retour pour une impulsion unique entre les miroirs d'entrée et le miroir de sortie. On peut faire se propager simultanément plusieurs impulsions à l'intérieur de la cavité en "bloquant", par un dispositif approprié, des modes séparés par un multiple de $c/2L$.

Comme la largeur des impulsions laser est reliée directement à la largeur spectrale de la courbe de gain du milieu amplificateur, on n'obtient des impulsions courtes que si cette largeur est relativement grande. La largeur d'un laser à gaz est typiquement de l'ordre de 10^9 à 10^{10} Hz, ce qui limite la largeur temporelle des impulsions à des valeurs supérieures à 100 picosecondes. En revanche, les lasers solides Nd-verre sont capables de produire des impulsions sub-picosecondes.

Mais, de ce point de vue, les lasers à colorant organique sont bien plus intéressants : avec des plages de fluorescence très larges (10 à 100 nm - 10^{13} à 10^{14} Hz), ils offrent le double avantage de produire des impulsions sub-picosecondes avec de plus, la possibilité d'accorder la

fréquence d'émission sur un domaine spectral très large. Il faut noter cependant, que pour un certain nombre de motifs, il est difficile d'obtenir des impulsions régulières plus courtes que quelques dixièmes de picosecondes même si le milieu amplificateur s'y prête. En effet, les compétitions entre modes et la dispersion à l'intérieur de la cavité produisent un espacement irrégulier des impulsions. D'autre part, des effets non linéaires tendent à les élargir et à distordre leur profil spectral.

Le fonctionnement en modes bloqués peut être obtenu de plusieurs façons. Qualitativement, on peut le décrire en disant qu'une modulation interne à la fréquence $\frac{c}{2L}$, obtenue à l'aide d'un champ extérieur ou grâce à des battements entre deux modes, engendre des fréquences latérales de part et d'autre de chaque mode oscillant. Ces bandes latérales coïncident approximativement en fréquence avec les modes adjacents de la cavité et les couplent par une relation de phase et de fréquence bien définie. Expérimentalement, ce champ extérieur est généralement produit par un modulateur placé à l'intérieur de la cavité. L'inconvénient principal de cette technique est qu'elle exige une stabilité extrême de la fréquence de modulation par rapport à la longueur de la cavité.

Au lieu de placer un modulateur à l'intérieur de la cavité du laser, on peut chercher à moduler le gain du milieu amplificateur. Cette méthode est particulièrement adaptée aux lasers à colorant. Comme ces lasers possèdent de très larges bandes d'absorption et qu'ils sont pompés optiquement, il est possible de les exciter avec le faisceau émis par un autre laser à modes bloqués. Dans ce cas, il est évidemment indispensable que la longueur de la cavité du laser à colorant soit un multiple de celle du laser pompe à modes bloqués. Les impulsions émises alors par le laser à colorant sont aussi courtes ou plus courtes même, que les impulsions du laser pompe.

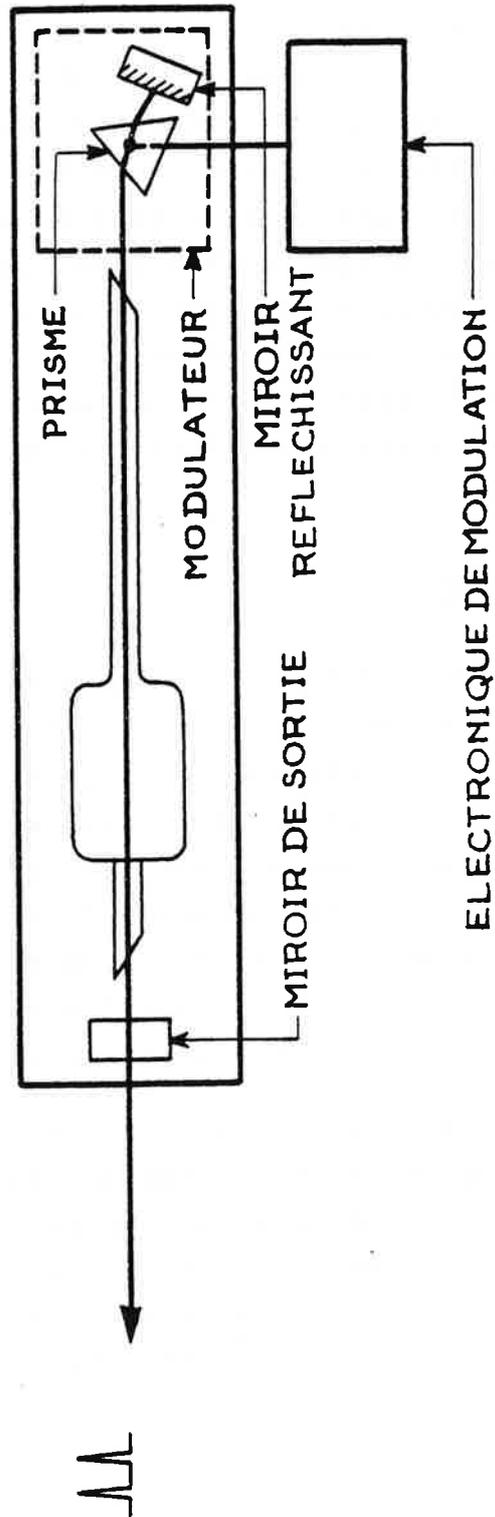


Figure 10 : Schéma du laser ionique fonctionnant en modes bloqués.

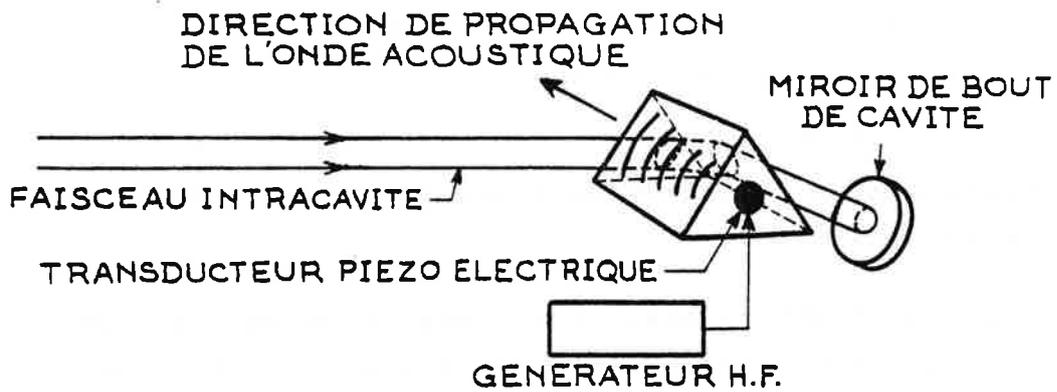
On a ainsi obtenu des impulsions picosecondes sur un large domaine de longueurs d'onde, le balayage de la fréquence étant réalisé en remplaçant le miroir de sortie du résonateur par un réseau orientable. Des impulsions picosecondes ont été engendrées par cette technique de pompage synchrone des lasers à colorant dans un domaine de longueurs d'onde allant de 400 nm à plus d'un micron. Une méthode de pompage synchrone de lasers à colorant réputée pour sa fiabilité consiste à utiliser comme laser pompe un laser ionique fonctionnant en modes bloqués grâce à une modulation acousto-optique. C'est ce système qui a été construit et que nous allons décrire à présent.

2) Le laser pompe

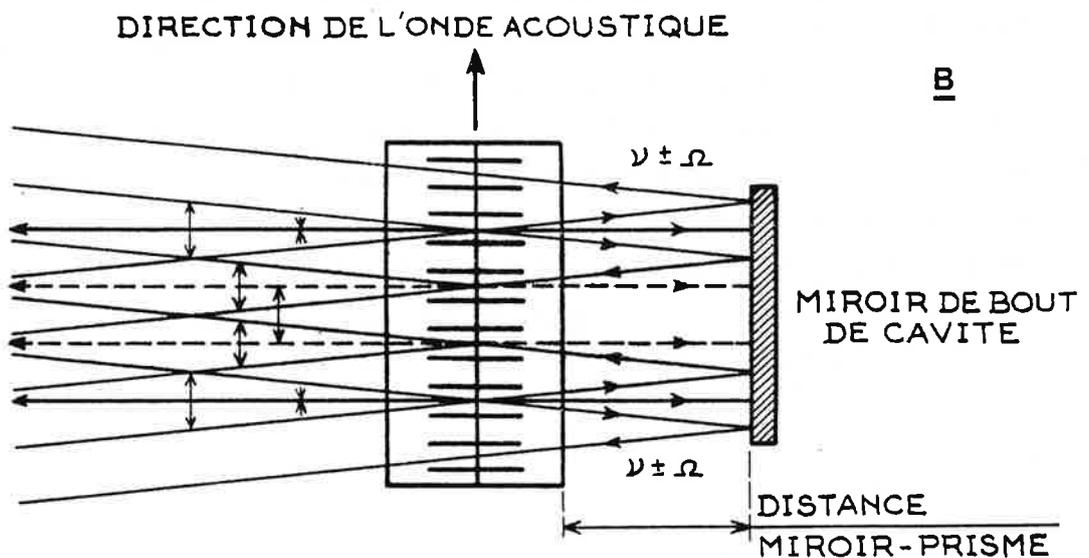
L'élément actif dans le laser ionique fonctionnant en modes bloqués est constitué par un modulateur acousto-optique placé à l'intérieur de la cavité optique (figure 10). Le modulateur lui-même est un prisme en silice avec deux faces soigneusement polies, parallèles à la direction de propagation du faisceau lumineux. Un transducteur piézoélectrique est solidaire d'une de ces faces. Ce transducteur est excité à haute fréquence et engendre une onde acoustique stationnaire à l'intérieur du prisme (figure 11.a).

Cette onde stationnaire induit des variations périodiques de l'indice de réfraction du prisme le long d'un axe perpendiculaire aux deux faces polies. Le prisme se comporte donc comme un réseau lorsqu'il est excité par cette onde acoustique. Le faisceau lumineux se propageant à l'intérieur de la cavité est en partie diffracté. Le décalage en fréquence du faisceau diffracté est égal, en valeur absolue, à la fréquence de modulation acoustique Ω .

Après ce premier passage, tous les rayons lumineux, diffractés ou non, sont réfléchis par le miroir de bout de cavité en direction du prisme. Le faisceau réfléchi est de



A



B

Figure 11

- A - Le modulateur acousto-optique avec son transducteur piezo électrique.
 B - Principe de la modulation en fréquence du faisceau intracavité.

nouveau diffracté à la traversée du réseau acoustique.

La fréquence Ω de l'onde acoustique qui excite le modulateur est choisie telle que :

$$\Omega = \frac{c}{4L}$$

ce qui correspond à la moitié de l'espacement des modes intracavité du laser ionique.

Après un double passage à travers le prisme, la fréquence des faisceaux lumineux qui ont été diffractés deux fois coïncide soit avec la fréquence du mode d'origine, soit avec celle d'un mode adjacent (figure 11.b). Il s'ensuit que les seuls modes qui seront entretenus à l'intérieur de la cavité sont ceux qui possèdent une fréquence et une phase en rapport avec celles du modulateur acousto-optique. Le modulateur introduit ainsi une relation de cohérence entre certains modes du laser qui pourront interférer entre eux et rester couplés par la même relation d'amplitude, de phase et de fréquence. Les autres modes sont rapidement amortis après quelques traversées du modulateur.

Lorsque ce couplage entre les modes de la cavité est établi, l'addition spectrale des composantes aux diverses fréquences résulte en un train d'impulsions périodiques (figure 12). On peut expliquer autrement l'apparition de ces impulsions en se plaçant dans le domaine non plus des fréquences mais du temps : on peut dire, en effet, qu'elles correspondent à la traversée du modulateur par le faisceau lumineux intracavité à un moment où sa transmission est maximum (2 fois par période de modulation).

La période T de ces impulsions est égale à l'inverse de l'espacement des modes intracavité : $T = \frac{2L}{c}$. La largeur temporelle Δt de chaque impulsion est limitée inférieurement par la largeur $\Delta \nu$ de la courbe de gain du laser, des perturbations diverses évoquées plus haut pouvant élargir l'impulsion et la déformer. Dans le cas d'une impulsion idéale de forme régulière, les relations de transformations de Fourier donnent : $\Delta t \cdot \Delta \nu \approx 0.441$ pour un profil gaussien et $\Delta t \cdot \Delta \nu \approx 0.6$ pour un profil lorentzien.

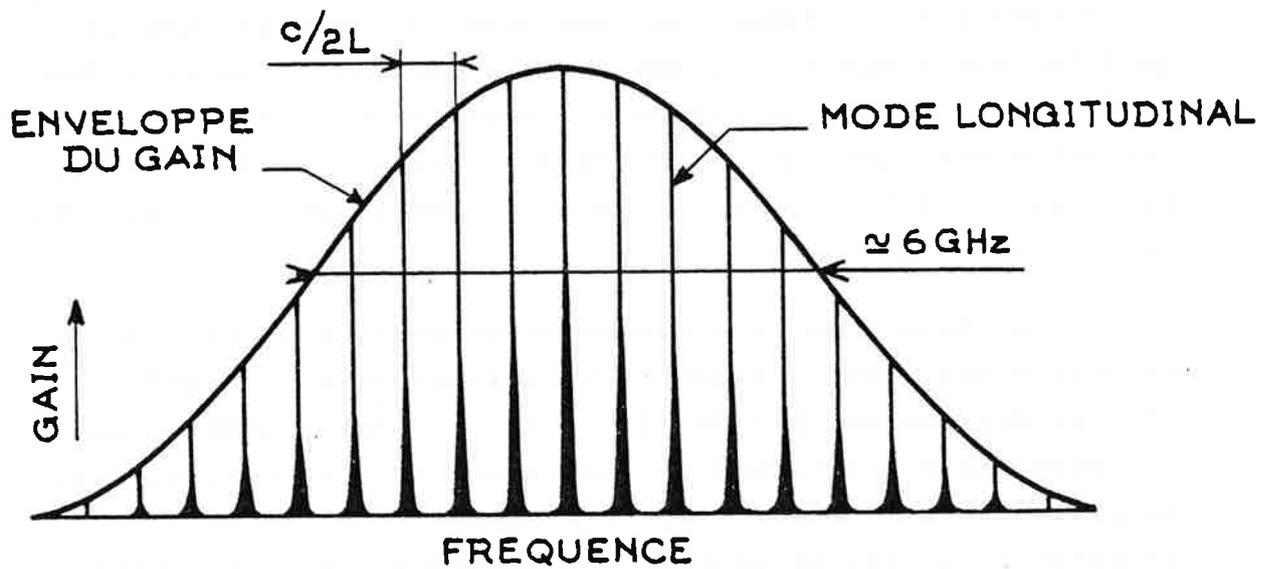


Figure 12

Distribution spectrale des modes longitudinaux
à l'intérieur de la courbe de gain du laser à Kr^+

Le laser ionique qui a été utilisé est un laser à Krypton ionisé (CR 3000 K), de longueur voisine de 3 m. L'espacement spectral entre modes est donc environ 75 MHz et la fréquence appliquée au modulateur égale à 37,5 MHz. L'enveloppe de la courbe de gain du laser à modes bloqués a une largeur d'environ 6 GHz mais la largeur temporelle des impulsions est 200 picosecondes, valeur un peu supérieure à celle escomptée à partir de la largeur de la courbe de gain.

On peut faire remarquer ici que le réglage du fonctionnement en modes bloqués ne consiste pas uniquement à ajuster la fréquence d'excitation du modulateur acousto-optique jusqu'à la rendre égale à la moitié de l'espacement entre modes du laser. Le prisme en silice se comporte en effet comme un circuit électrique, avec une impédance caractéristique et il n'est pas possible de lui imposer indifféremment n'importe quelle contrainte.

Le réglage du fonctionnement en modes bloqués consiste donc à agir simultanément sur la longueur de la cavité (par un déplacement fin du miroir du bout de cavité) et sur la fréquence d'excitation du modulateur acousto-optique afin de chercher le meilleur compromis entre intensité moyenne du faisceau de sortie et stabilité des impulsions observées grâce à un oscilloscope à échantillonnage. On arrive ainsi à obtenir des impulsions de 200 ps régulièrement espacées avec une puissance crête de 70 Watt minimum correspondant à une puissance moyenne effective de 1 Watt à 1,5 Watt.

C'est ce laser à Kr^+ fonctionnant en modes bloqués qui a été utilisé pour pomper de façon synchrone le laser à colorant continu qui va être décrit maintenant.

3) Laser à colorant

Les premières tentatives de production d'impulsions courtes dans les lasers à colorant ont utilisé ce type de pompage synchrone à l'aide d'un laser pompe fonctionnant en modes bloqués.

Au cours de ce processus de pompage, la modulation nécessaire au couplage des modes longitudinaux du laser à colorant est obtenue par l'excitation rapide et périodique du gain du milieu amplificateur. La longueur optique de la cavité doit être ajustée pour obtenir un fonctionnement synchrone avec la fréquence du train d'impulsions de pompage. Lorsque la longueur de la cavité du laser à colorant est rendue égale à (ou sous-multiple de) la longueur du laser pompe, on obtient en sortie du laser à colorant des trains d'impulsions de périodes égales à (ou sous-multiples de) la période des impulsions pompes.

Dans cette configuration, à chaque impulsion pompe qui pénètre dans le jet de colorant, le front montant de l'impulsion amène la population du niveau excité des molécules organiques au-dessus du seuil critique d'amplification de la fluorescence. La durée de circulation d'une impulsion laser à l'intérieur de la cavité est ajustée en fonction de la fréquence de répétition des impulsions du laser à Krypton. L'impulsion du laser à colorant revient donc au niveau du jet lorsque le gain du milieu amplificateur atteint le seuil critique (figure 13). La probabilité d'émission stimulée dans ce milieu étant très importante, l'inversion de population décroît rapidement sous l'action de l'impulsion laser.

C'est cette chute rapide de l'amplification dans les lasers à colorant pompés de façon synchrone par des lasers à modes bloqués qui est à l'origine de la production d'impulsions plus courtes que les impulsions de pompage. Bien que la fréquence de répétition des impulsions du laser à colorant soit déterminée exclusivement par la fréquence de répétition des impulsions de pompage, leur intensité et leur forme est affectée par la longueur relative de la cavité du laser à colorant par rapport à celle du laser pompe. En particulier, une cavité plus courte de quelques dizaines de microns donnera des impulsions plus brèves mais moins intenses [103].

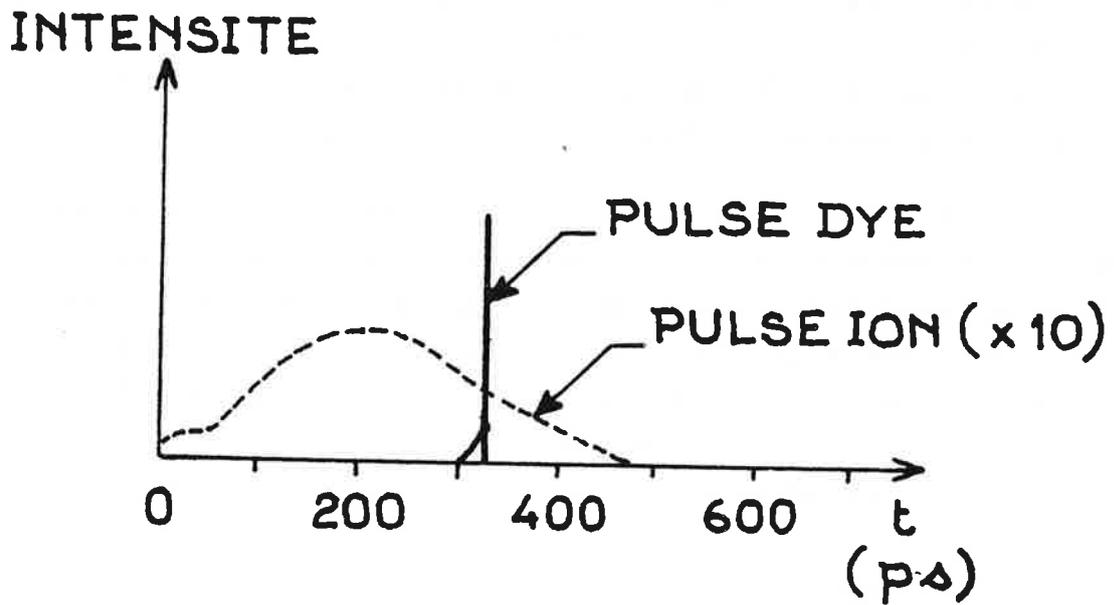
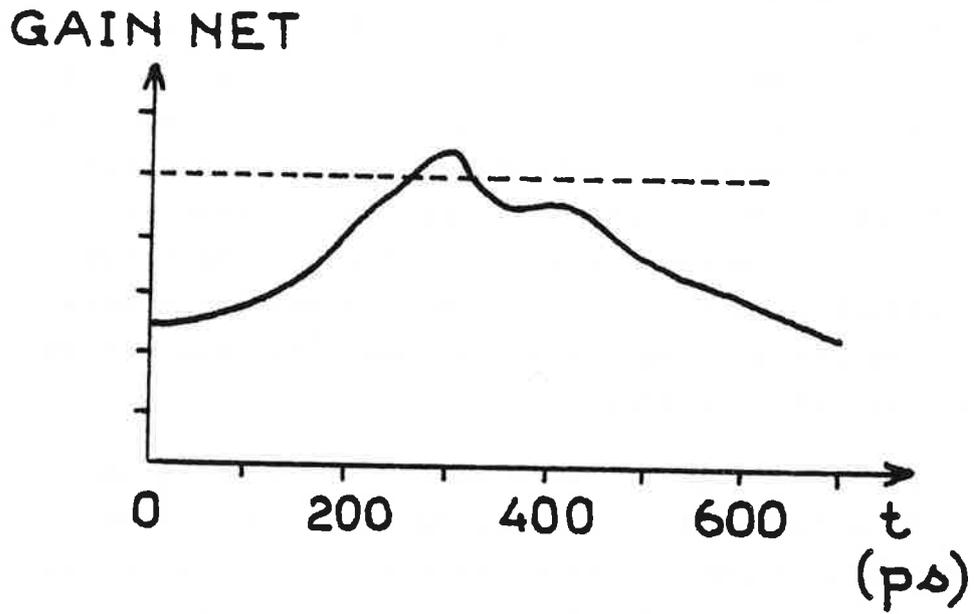


Figure 13

Schéma de principe de la production d'une impulsion
à l'intérieur du laser à colorant

Le schéma de principe du laser à colorant utilisé est représenté en figure 14.

La longueur géométrique de la cavité est de l'ordre de 50 cm. Or, pour effectuer un pompage synchrone de ce laser à l'aide des impulsions fournies par le laser à Kr^+ , il est nécessaire que les deux cavités aient la même largeur optique ($L \sim 2$ m).

Pour de multiples raisons (encombrement, stabilité mécanique, délicatesse des réglages de l'optique), nous avons préféré ne pas augmenter les dimensions géométriques externes de la cavité du laser à colorant. En revanche, le chemin optique du faisceau intracavité a été allongé en repliant ce faisceau sur lui-même grâce à l'introduction de réflexions supplémentaires entre les deux extrémités de la cavité ; ces réflexions sont assurées par les deux miroirs plans totalement réfléchissants M_2 et M_3 . Le miroir M_2 est mobile ; une vis micrométrique permet un réglage fin de sa position et donc de la longueur de la cavité. Le faisceau pompe est introduit dans la cavité à l'aide d'un petit prisme à réflexion totale. Une lentille L_1 focalise le faisceau pompe sur le jet de colorant. Celui-ci est placé à l'une des extrémités de la cavité, cette configuration permettant d'obtenir en sortie du laser un train d'impulsions de période égale à celle des impulsions de pompage. Une autre lentille achromatique L_2 focalise le faisceau intracavité sur le jet de colorant.

La cavité est fermée d'un côté par un miroir sphérique M_1 et de l'autre côté par un réseau plan doré G qui assure en même temps la sélection de la longueur d'onde d'émission du laser. Le balayage de la longueur d'onde s'effectue par rotation du réseau à l'aide d'un moteur pas à pas.

Le faisceau laser utile provient du faisceau d'ordre zéro fourni par le réseau G_1 . Ce faisceau de sortie se réfléchit sur le miroir M_4 placé hors de la cavité proprement

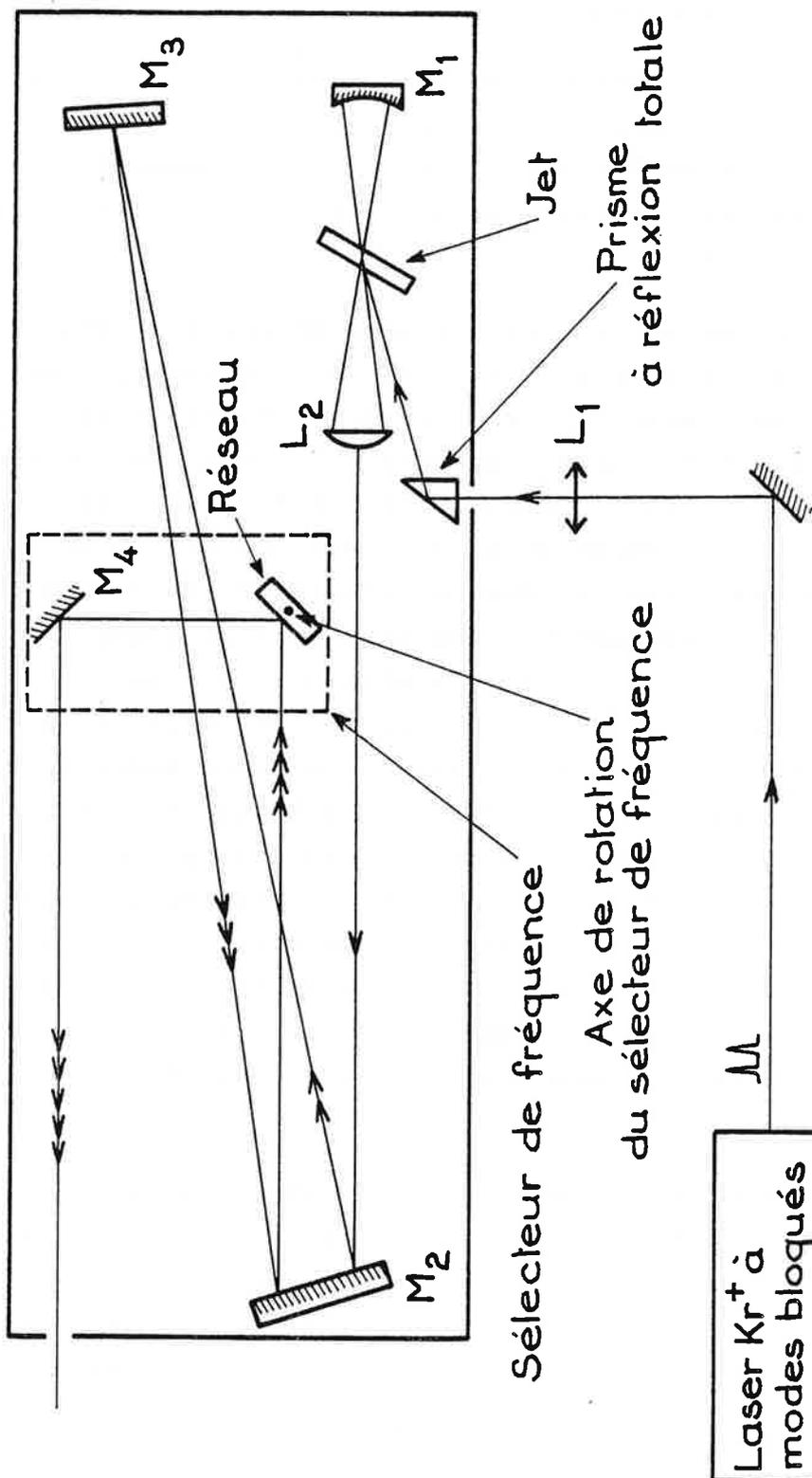


Figure 14 : Schéma de principe du laser à colorant utilisé.

dite. Ce miroir, disposé perpendiculairement au réseau, est solidaire de ce dernier ; la rotation du réseau entraîne donc celle du miroir de telle façon que l'axe du faisceau utile ne varie pas pendant un balayage de fréquence.

Les modes longitudinaux sur lesquels oscille le laser à colorant en fonctionnement bloqué couvre une bande de fréquences dont la largeur dépend de la résolution du réseau. Lorsqu'on veut augmenter celle-ci, on élargit le faisceau intracavité au niveau du réseau afin d'éclairer un plus grand nombre de traits sur celui-ci. Ce faisant, on diminue le nombre de modes longitudinaux et la largeur spectrale de la bande d'oscillation du laser. Il en résulte alors une augmentation de la durée des impulsions.

Expérimentalement, la largeur de la bande spectrale sur laquelle oscille notre laser à colorant à modes bloqués est d'environ $0,3$ à $0,4 \text{ cm}^{-1}$ (10 GHz environ). La durée des impulsions est donc de l'ordre de la centaine de picosecondes.

En résumé, compte tenu de l'intervalle spectral sélectionné par le réseau, le profil spectral de l'émission laser est composé d'un nombre important de modes longitudinaux (≈ 150) couvrant un domaine de fréquence voisin de 10 GHz, d'intensité stable et régulièrement espacés de 75 MHz. La rotation du réseau permet de déplacer continûment et à vitesse constante ce paquet de modes et ceci sans modification de la direction du faisceau de sortie.

Le domaine de longueurs d'onde à explorer s'étend de 810 à 820 nm. Le colorant utilisé est du DEOTC dilué dans l'Ethylène Glycol additionné d'une petite quantité (10 %) de DMSO (Diméthyl Sulfoxyde). Les molécules du colorant sont excitées par les raies rouges issues du laser à Kr^+ . Les impulsions de pompage ont une puissance crête supérieure à 30 W. De ce fait, le laser à colorant fonctionne bien au-dessus de son seuil, ce qui permet de couvrir sans difficulté un domaine spectral très étendu.

La puissance moyenne des impulsions délivrées par le laser à colorant est supérieure à 50 mW. Le balayage du réseau à l'aide du moteur pas à pas s'effectue par pas minimal de 1 GHz environ. Un compteur de pas permet de repérer le sens du balayage et donne une indication grossière de la longueur d'onde.

Les premiers essais du système laser ont été réalisés sur des jets d'atomes de Rubidium stable, composé des isotopes ^{85}Rb ($I=\frac{5}{2}$) et ^{87}Rb ($I=\frac{3}{2}$). La structure hyperfine du premier est de l'ordre de 3 GHz ; celle de l'isotope 87 est égale à 6,8 GHz. La structure de ces deux isotopes est beaucoup plus étroite que celle des isotopes du Francium et leur étude en excitation à bande large constitue un excellent test des performances du système laser.

L'expérience a été réalisée sur la raie D_2 , à $\lambda = 780,0$ nm. Le pompage optique induit un déséquilibre entre les populations des niveaux Zeeman du fondamental qui est détecté en présence d'un champ magnétique inhomogène. Ce champ a pour effet de focaliser les atomes de moment magnétique $m_J = +\frac{1}{2}$.

L'expérience est réalisée en lumière polarisée. La largeur spectrale du laser est réduite en élargissant le faisceau intracavité.

Parmi les composantes hyperfines, celles qui mettent en jeu le niveau $F = I + \frac{1}{2}$ conduisent à des signaux négatifs ; les autres conduisent à des signaux positifs. Le choix de la polarisation étant limité aux polarisations circulaires σ^+ et σ^- (une excitation π est impossible en raison de la géométrie du dispositif expérimental), on a intérêt à choisir σ^+ pour les signaux positifs et σ^- pour les signaux négatifs.

La largeur spectrale de notre source excitatrice est, bien entendu, trop importante pour espérer résoudre les différentes composantes hyperfines. Elles apparaissent donc

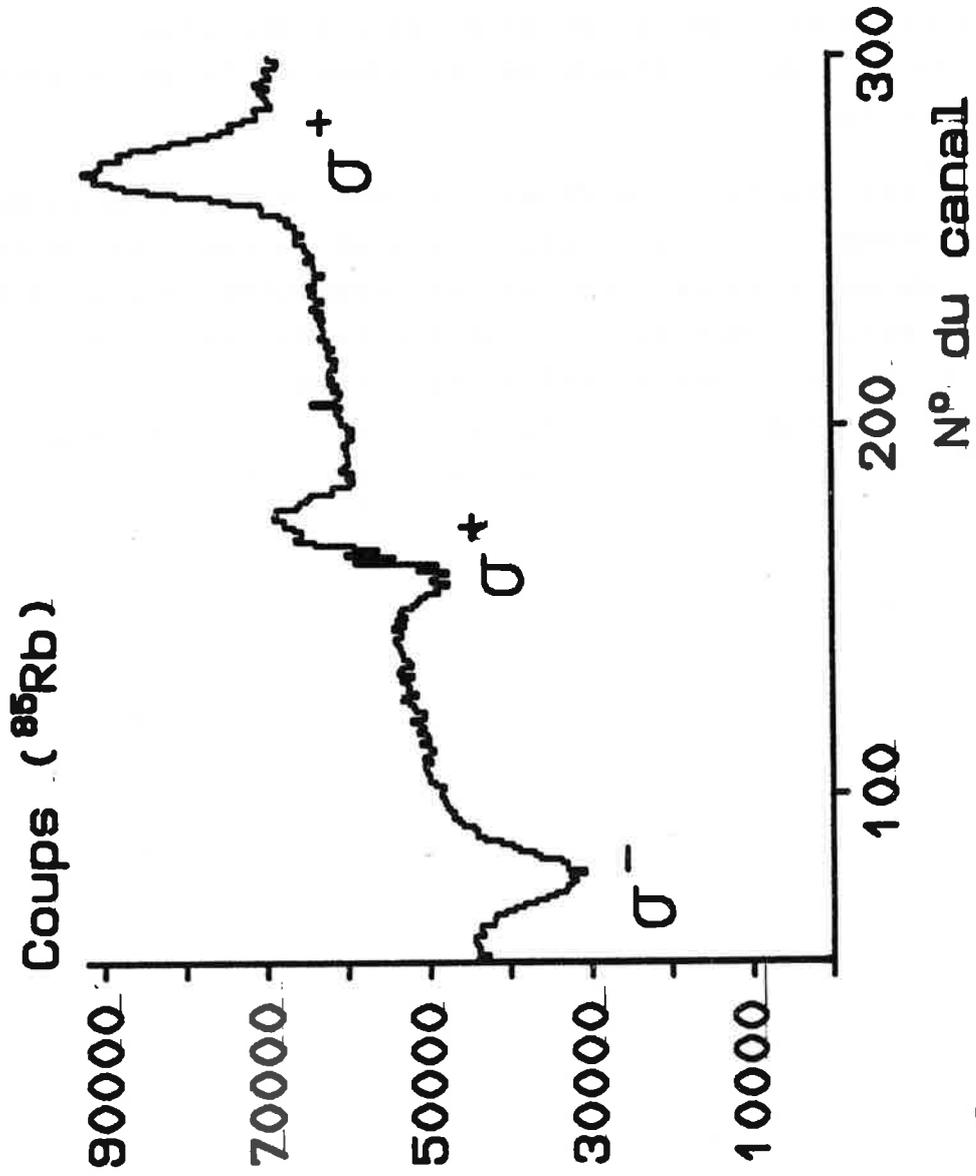


Figure 15

Enregistrement type de la structure du ^{85}Rb , réalisé à l'aide du laser à modes bloqués, en excitation σ^+ et σ^- .

sous la forme d'une large et unique résonance, positive ou négative suivant le niveau hyperfin de départ.

Un enregistrement typique de ces résonances est reproduit sur la figure 15. En repérant la longueur d'onde du laser fixé au centre d'une résonance par rapport à des raies spectrales connues, on peut déduire une première estimation de la longueur d'onde de résonance de la transition optique étudiée.

Cette expérience préliminaire sur le Rubidium donne donc l'assurance que la détermination de la position de la raie D_1 du Francium se fera dans des conditions d'excitation au moins aussi bonnes du point de vue de la source lumineuse ; en effet, la structure hyperfine du niveau fondamental de ce dernier est beaucoup plus large que dans le cas du Rubidium : 39,3 GHz pour ^{213}Fr contre 6,83 GHz pour ^{87}Rb .

IV. DETERMINATION DE LA RAIE D₁ DU FRANCIUM

Un enregistrement type effectué au cours d'un balayage de la fréquence du laser à colorant, est reproduit en figure 16.

Suivant la polarisation de la lumière, on distingue deux résonances : celle qui est négative est obtenue en polarisation σ^- , l'autre positive en lumière σ^+ . Leur écart en fréquence correspond à l'écart hyperfin de l'état fondamental qui avait été mesuré précédemment sur la raie D₂ :

$$\Delta\nu_{\text{HFS}}(^{212}\text{Fr})_{7^2\text{S}_{1/2}} \approx 50 \text{ GHz.}$$

Pour mesurer la longueur d'onde de la transition observée dans ces conditions, la fréquence du laser a été fixée sur le minimum de la résonance négative. On photographie alors simultanément le spectre du laser et celui d'une lampe à vapeur de Krypton fourni par un spectrographe à réseau (THR-SOPRA).

A l'aide d'une analyse densitométrique de cette plaque photographique, et à partir des longueurs d'onde des raies du Krypton I qui encadrent le mieux la raie laser (figure), on a pu déterminer la longueur d'onde dans l'air correspondant au centre de gravité de la raie D₁ de l'isotope de masse 212 du Francium :

$$\lambda_{D_1} (^{212}\text{Fr}) = 816,90 \pm 0,02 \text{ nm.}$$

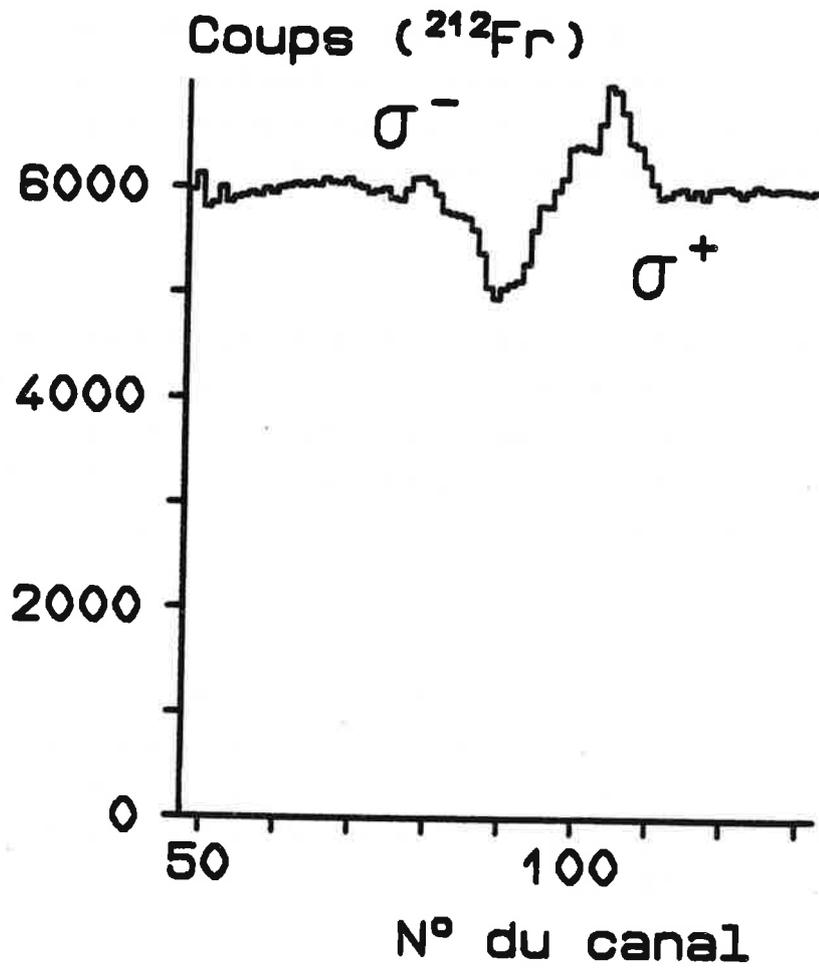


Figure 16

Enregistrement type effectué au cours d'un balayage de
la structure du Francium 212

Cette valeur a été obtenue en moyennant les résultats mesurés à partir de six enregistrements différents. L'incertitude donnée est égale à 4 fois l'écart quadratique moyen.

A partir de cette valeur et par comparaison avec la mesure de la longueur d'onde de la raie D_2 pour le même isotope :

$$\lambda_{D_2} (^{212}\text{Fr}) = 717,97 \pm 0,01 \text{ nm}$$

on déduit l'écart de structure fine entre les niveaux excités :

$$\Delta\nu_{\text{SF}}(7p^2P_{3/2} - 7p^2P_{1/2}) = 1686,8 \pm 0,5 \text{ cm}^{-1}.$$

On peut noter que les valeurs de λ_{D_1} et $\Delta\nu_{\text{SF}}$ mesurées sont supérieures aux résultats des calculs ab-initio cités précédemment [101,102]. Il faut noter à cet égard que nos valeurs expérimentales résultent de mesures effectuées à basse résolution. Elles doivent donc être considérées comme des résultats préliminaires. D'autres expériences sont actuellement en cours, qui doivent permettre d'améliorer la précision de la mesure des longueurs d'onde. Dans ces expériences, la source excitatrice est un laser à colorant continu et monomode, piloté par un sigmamètre.

L'analyse de la structure de la raie D_1 par un laser monomode de fréquence accordable continuellement permettra d'enregistrer les différentes composantes hyperfines et de mesurer ainsi la structure hyperfine et le déplacement isotopique des différents isotopes de Francium pour la raie D_1 .

De plus, l'enregistrement simultané d'un spectre d'absorption saturée de la molécule d'iode fournira des raies de référence pour une mesure précise de la longueur d'onde λ_1 .

TABLEAU 1

A	I	IS (MHz)	A($^2S_{1/2}$) (MHz)	A($^2P_{3/2}$) (MHz)	B($^2P_{3/2}$) (MHz)
208	7	6645,2 (9,2)	6639,7 (7,0)	72,8 (0,5)	8,9 (7,5)
209	9/2	4771,4 (7,5)	8590,5 (10,5)	93,1 (0,6)	-61,0 (5,8)
210	6	4243,1 (8,0)	7182,4 (8,1)	77,9 (0,2)	47,6 (2,2)
211	9/2	2533,7 (8,0)	8698,2 (10,5)	94,7 (0,2)	-55,3 (3,4)
212	5	1628,3 (7,5)	9051,3 (9,5)	99,1 (0,9)	-35,3 (15,5)
213	9/2	0	8744,9 (10,5)	94,5 (1,6)	-20,7 (17,0)

$$\lambda_{D_2} (^{212}\text{Fr}) = 717,97 \pm 0,01 \text{ nm}$$

$$\lambda_{D_1} (^{212}\text{Fr}) = 816,90 \pm 0,02 \text{ nm}$$

$$\Delta\nu_{SF} = 1686,8 \pm 0,5 \text{ cm}^{-1}$$

V. CONCLUSION

Les informations connues jusqu'à présent sur les isotopes du Francium de masses 208 à 213 sont résumées dans le tableau 1. Les valeurs des constantes hyperfines atomiques et nucléaires ont été obtenues en étudiant les écarts hyperfins de la raie D_2 . Les mesures qui concernent la raie D_1 (λ et $\Delta\nu_{SF}$) proviennent de la présente expérience.

L'étude de la structure hyperfine et des déplacements isotopiques sur la raie D_1 reste à faire. Il est aussi prévu de poursuivre la même étude du côté des noyaux de Francium riches en neutrons ($A \geq 220$)*. Cette extension de nos mesures vers les isotopes lourds présente un grand intérêt du point de vue de la physique nucléaire car elle permettrait de prolonger nos mesures vers des isotopes situés de l'autre côté du nombre magique $N = 126$, correspondant à la fermeture de la couche à 126 neutrons.

D'autre part, il serait souhaitable de disposer d'une détermination absolue du moment magnétique d'un des isotopes qui ont été étudiés. Les moments magnétiques de tous les autres isotopes pourraient alors en être simplement déduits. A partir de la valeur de ce moment magnétique, on pourrait aussi calculer la densité de probabilité de présence de l'électron S au centre du noyau $|\psi_S(0)|^2$; à l'aide de ce dernier paramètre, il deviendrait possible de déterminer le facteur électronique F qui relie le déplacement isotopique à la variation du carré moyen du rayon de charge.

* (Les isotopes du Francium dont les masses vont de 214 à 219 ont une durée de vie trop courte pour être étudiés derrière un séparateur d'isotopes).

CONCLUSION GENERALE

Nous avons résumé à la fin de chacune des trois parties de cet exposé les avantages apportés par les expériences qui y ont été décrites et nous avons mentionné les prolongements à court terme qui peuvent être envisagés. Nous allons à présent, en conclusion à ce mémoire, essayer de dégager quelques perspectives à plus long terme.

Pour ce qui concerne la spectroscopie colinéaire sur jets d'atomes rapides, notre travail a consisté à tester, en terme de sensibilité, sur des isotopes stables, différents modes de détection envisageables. D'autre part, deux méthodes originales de mesures du spin nucléaire ou du moment magnétique nucléaire, dans le cas des atomes diamagnétiques, ont été mises au point. Ces différentes méthodes apportent un enrichissement certain à la technique de spectroscopie colinéaire qui s'est déjà révélée précieuse pour l'étude des paramètres nucléaires de l'état fondamental des noyaux éloignés de la stabilité.

En spectroscopie des isotopes radioactifs des alcalins, une série d'expériences sur les isotopes lourds (Rb, Cs et Fr) est programmée. Quelques mesures sont prévues sur les isotopes de Cs et Rb pour compléter les résultats antérieurs : étude par spectroscopie laser des isotopes $^{118}, ^{146}, ^{147}\text{Cs}$ et ^{77}Rb , recherche de l'isomère $^{120\text{m}}\text{Cs}$, et mesure par résonance magnétique des structures hyperfines dans l'état fondamental des isotopes suivants : ^{140}Cs , $^{76}, ^{77}, ^{82}, ^{84\text{m}}\text{Rb}$, et enfin mesure du spin de ^{98}Rb .

Mais c'est essentiellement sur les isotopes de Francium que porte le programme de recherche ; deux directions de recherche sont projetées dont une partie a commencé à voir un début de réalisation :

- Les raies D_1 et D_2 du Francium ont été toutes deux observées. Très récemment, la structure hyperfine de la raie D_1 a été aussi explorée à haute résolution. L'étape suivante consistera à rechercher d'autres transitions et à déterminer la position en énergie d'autres niveaux excités. Il s'agira dans un premier temps du niveau $8p$ en utilisant la même procédure expérimentale de déflexion magnétique, puis, éventuellement, d'autres niveaux de la série np en utilisant des excitations optiques à plusieurs étages. Ces expériences permettraient en particulier de déterminer précisément la limite d'ionisation. Elle ne pourront se faire bien entendu que sur l'isotope le plus abondant de l'élément (^{213}Fr).

- Seuls six isotopes ($n = 208-213$) ont été étudiés à haute résolution ; or le Francium a la particularité de présenter deux séries d'isotopes à longues périodes : les isotopes légers, de masse inférieure ou égale à 213 et les isotopes lourds, de masse supérieure ou égale à 220. On se propose d'étudier la variation du rayon carré moyen de charge $\langle r^2 \rangle$ entre les deux zones d'isotopes et donc de mesurer les déplacements isotopiques pour ceux de masse supérieure à 220.

Si l'on excepte les études énumérées précédemment, il est clair que la spectroscopie hyperfine des isotopes radioactifs des alcalins est pour sa plus grande part achevée. Les éléments à nombre pair de protons offrent probablement l'avantage d'une interprétation théorique plus aisée. Certains résultats ont déjà été obtenus par d'autres groupes de recherche sur les alcalino-terreux [49]. Nous avons porté notre intérêt sur les isotopes de gaz rares. Dans le cas de ces isotopes, le processus d'échange de charges utilisé en spectroscopie colinéaire permettra d'obtenir une population atomique importante dans les états métastables. La réalisation d'un jet atomique rapide de gaz rares (Xe, en particulier) est l'un des objectifs fixés à court terme.

D'autres méthodes de détection non optique sont envisageables, en particulier celle qui utilise un transfert de charge inverse. Cette méthode repose sur le fait que les sections efficaces de transfert de charge sont bien plus grandes lorsque l'atome de gaz rare est dans un état métastable que lorsqu'il est dans son état fondamental.

D'autre part, les expériences de détection par ionisation par champ électrique se sont montrées concurrentielles par rapport à la détection classique de la fluorescence, moyennant quelques améliorations techniques au niveau de la puissance du laser qui assure le deuxième étage de l'excitation optique. Il a été signalé à ce propos que l'utilisation d'un laser à modes bloqués était envisagée. L'excitation colinéaire du jet atomique avec ce deuxième laser serait alors possible. En effet, la stabilité de l'intensité et de l'espacement des modes longitudinaux du fonctionnement en modes bloqués assure une excitation régulière des atomes du jet vers l'état de Rydberg.

On peut enfin envisager, au lieu d'une ionisation par champ électrique de ces atomes de Rydberg, leur photoionisation par un rayonnement laser de fréquence et intensité convenables. Cette méthode pourrait alors constituer une autre voie de détection non optique des résonances optiques de l'atome.

BIBLIOGRAPHIE

- [1] KAUFMAN S.L., Opt. Commun., 17, 309 (1978).
- [2] ANTON K.R. et al., Phys. Rev. Lett., 40, 642-645 (1978).
- [3] SCHINZLER et al., Phys. Lett., 79B, 209 (1978).
- [4] BONN J. et al., Z. Phys., A289, 227 (1979).
- [5] KLEMP T. W., BONN J., NEUGART R., Phys. Lett., 82B, 47 (1979).
- [6] MUELLER A.C. et al., Nucl. Phys., A403, 234 (1983).
- [7] DUONG H.T., VIALLE J.L., J. Physique-Lettres, 41 407 (1980).
- [8] RAMSEY N.F., Molecular Beams, Clarendon Press, Oxford (1956).
- [9] WING W.H. et al., Phys. Rev. Lett., 36, 1488 (1976).
- [10] MEIR T. et al., Opt. Commun., 20, 397 (1977).
- [11] BURGHARDT B. et al., Opt. Commun., 33, 169 (1980).
- [12] DONNALY B.L. et al., Phys. Rev. Lett., 12, 502 (1960).
- [13] ICE G.E., OLSON R.E., Phys. Rev., A11, 111 (1975).
- [14] ARNOLD E. et al., Phys. Lett., 90A, 399 (1982).
- [15] AHMAD S.A. et al., Submitted to Phys. Lett. B (Sept. 1983).
- [16] WINTER H., GAILLARD M., J. Phys. B., 10, 2739 (1977).
- [17] RAPP D., FRANCIS W.E., J. Chem. Phys., 37, 2631 (1962).
- [18] RAPP D., ORTENBURGER I.B., J. Chem. Phys., 33, 1230 (1960).
- [19] PEREL J., DALEY H.L., SMITH F.J., Phys. Rev., A1, 1926 (1970).
- [20] MASSEY H.S., GILBODY H., in "Electronic and Ionic Impact Phenomena", Clarendon Press, Oxford, Vol. 4, (1974).
- [21] PEREL J., VERNON R.H., DALEY H.L., Phys. Rev., 138, A937 (1965).
- [22] DALEY H.L., PEREL J.L., Proc. 6th Int. Conf. on Physics of electronic and atomic collisions (ICPEAC VI) Camb. Mass. M.I.T. Press, 1051 (1969).
- [23] FIRSOV O.B., JETP 27, 1001 (1951).
- [24] KENNARD E.H., "Kinetic Theory of gases", page 179, Mac Graw Hill (1983).
- [25] Handbook of Chemistry and Physics, 14th ed. The Chemical Rubber Publishing Company, Cleveland (Ohio), (1963).
- [26] HARTING E. et READ F.H., "Electronic lenses", Elsevier.

- [27] BACAL M., REICHEL W., Rev. Sci. Inst., 45, n°6, 769 (1977).
- [28] BACAL M. et al., Nucl. Inst. Meth., 114, 407 (1974).
- [29] JUNCAR P., PINARD J., Opt. Commun., 14, 438 (1975).
- [30] JUNCAR P., Thèse 3^{ème} Cycle, Université Paris XI, Orsay (1976).
- [31] JUNCAR P., Thèse de Doctorat d'Etat, Université Paris XI, Orsay (1982).
- [32] ARIMONDO E., INGUSCIO M., VIOLINO P., Rev. Mod. Phys., 49, 31 (1977).
- [33] PICQUE J.L., Thèse de Doctorat d'Etat, Université de Paris XI, Orsay (1977).
- [34] SAINT-JALM J.M., Thèse de 3^{ème} Cycle, Université de Paris XI, Orsay (1984).
- [35] BRUHAT G., Cours de Physique Générale. Optique. page 552, Masson et Cie, Paris (1965).
- [36] DUONG H.T., VIALLE J.L., C.R. Hebd. Scan. Acad. Sci., 290B, 533 (1980).
et J. Physique Lett., 41, L-407 (1980).
- [37] BEGUIN F., GAILLARD M.L., WINTER H., MEUNIER G., J. Physique, 38, 1185 (1977).
- [38] BEGUIN-RENIER F., DESEQUELLES J., GAILLARD M.L., Physica-Scripta, 18, 21-25 (1978).
- [39] Voir par exemple :
- a) CAHUZAC P., Thèse de Doctorat d'Etat, Université de Paris XI, Orsay (1974).
- b) KELLER J.C., idem (1978).
- [40] HAROCHE S. et HARTMANN F., Phys. Rev., A6, 1280 (1972).
- [41] DELSART C., KELLER J.C., Opt. Commun., 15, 91 (1975).
- [42] DELSART C., KELLER J.C., J. Phys., 39, 350 (1978).
- [43] FENEUILLE S., SCHWEIGHOFER M.G., J. Physique, 36, 781 (1978).
- [44] LETOKHOV V.S., CHEBOTAYEV V.P., "Non Linear Laser Spectroscopy", Springer Series in Optical Sciences, Vol. 4, Springer Verlag (1976).
- [45] CHEBOTAYEV V.P. dans "High Resolution Laser Spectroscopy", Topics in Applied Physics, Vol. 13, Springer Verlag (1976).
- [46] KELLER J.C., DELSART C., J. Phys., B13, 241 (1980).
- [47] NEUGART R., 10th Int. Conf. on Electromagnetic isotope separators and Techniques related to their applications (EMIS 10) Zinal, Suisse (1980).

- [48] NEUGART R., Proc. Int. Conf. on Lasers in Nuclear Physics. Oak Ridge, Tennessee, USA, (1982). Nuclear Science Research Conference Series, Vol. 3 (Harwood Academic Publishers).
- [49] NEUGART R., Conf. on Laser Spectroscopy, Intertake, Switzerland, à publier dans Laser Spect. VI, Springer Verlag (Juin 1983).
- [50] SERIES G.W., Proc. Phys. Soc., 88, 995 (1966).
- [51] LALOE F., LEDUC M., MINGUZZI P., J. Physique, 30, 279 et 341 (1969).
- [52] PANTCHARATNAM S., Phys. Lett., 27A, (1968).
- [53] WALTHER H., SOLIEDER R., Z. Physik, 270, 55 (1974).
- [54] BARRAT J.P. et COHEN-TANNOUDJI C., J. Phys. Rad., 22, 329, 443 (1961).
- [55] ULM G., EBERZ J., HUBER G., LOCHMANN H., 15th EGAS Conf., Madrid (1983).
- [56] DUCLOY M., GORZA M.P., DECOMPS B., Opt. Commun., 8, 21 (1973).
- [57] DECOMPS B., DUMONT M., DUCLOY M. dans "Laser Spectroscopy of Atoms and Molecules" édité par H. Walther, Topics in Applied Physics, Vol. 2, Springer Verlag, Berlin (1976).
- [58] TOREY H.C., Phys. Rev., 59 (1941).
- [59] JACQUINOT P., FENEUILLE S., Advances in At. Mol. Phys., 17, 99 (1981).
- [60] FABRE C., GROSS M., HAROCHE S., Opt. Commun., 13, Vol. 4, 393 (1975).
- [61] KLEPPNER D. et al., Phys. Rev. Lett., 35, 366 (1975).
- [62] GALLAGHER J.F. et al., Phys. Rev. Lett., A16, 1098 (1977).
- [63] VIALLE J.L., DUONG H.T., J. Phys. B, 12, n°8 (1979).
- [64] GOUGH T.E. et al., Rev. Sci. Instrum., 52 (6), 802 (1981).
- [65] EKSTROM C., LINDGREN I., Atomic Physics, Vol. 5, R. Marrus, M. Prior, H. Shugart Ed., New York, Plenum, 201-213 (1977).
OTTEN E.W., idemn, 239-268.
- [66] DUONG H.T., VIALLE J.L., Opt. Commun., 12, 71-74, (1974).
- [67] HUBER G. et al., Phys. Rev., C 18, 2342-2354 (1978).
- [68] THIBAUT C. et al., Phys. Rev., C 23, 2720-2729 (1981).
- [69] LIBERMAN S. et al., Phys. Rev., A 22, 2732-2737 (1980).
- [70] THIBAUT C. et al., Nucl. Phys., A 367, 1-12 (1981).

- [71] DUONG H.T. et al. J. Physique, 43, 509-514 (1982).
- [72] FULLER G.H., J. Phys. Chem., Ref. Data, 5, 835-1092 (1976).
- [73] GUIMBAL P., Thèse de 3^{ème} Cycle, Université Pierre et Marie Curie (1981).
- [74] JACQUINOT P., KLAPISCH R., Rep. Prog. Phys., 42, 773 (1979).
- [75] EISINGER J.T., BEDERSON B. et FELD B.T., Phys. Rev., 86, 73-81 (1952).
- [76] ZACHARIAS J.R., Phys. Rev., 61, 270 (1942) et Phys. Rev., 94, 751T (1954).
- [77] KUSCH P., MILLMAN S., RABI I.I., Phys. Rev., 57, 765 (1940).
- [78] BUCK P., RABI L.L., Phys. Rev., 107, 1291-1294 (1957).
- [79] WANG E.C., YELLIN J., Phys. Rev., A 4, 838-841 (1971).
- [80] SCHMIEDER R.W., LURIO A., HAPPER W., Phys. Rev., 173, 76-79 (1978).
- [81] NEY J., Z. Phys., 223, 126-138 (1969).
- [82] NEY J. et al., Z. Phys., 213, 192-201 (1968).
- [83] BEKK K. et al., Z. Phys., A 289, 227-228 (1979).
- [84] NOWICKI G. et al., Phys. Rev., C 18, 2369-2379 (1978).
- [85] NOWICKI G. et al., Phys. Rev. Lett., 34, 1209 (1975).
- [86] NOWICKI G., et al., Phys. Rev. Lett., 41,
- [87] PEREY M., C.R. Acad. Sci., 208, 97 (1939).
- [88] CARRAZ L.C. et al., Nucl. Instrum. Meth., 148, 217 (1978).
- [89] YAGODA H., Phys. Rev., 40, 1017 (1932).
- [90] WYART J.F., Communication Privée.
- [91] BAINBRIDGE K.T., Phys. Rev., 34, 752 (1929).
- [92] YAGODA H., Phys. Rev., 38, 2298 (1931).
- [93] LIBERMAN S. et al., Communication Privée.
- [94] MUELLER A.C., Diplomarbeit, Mainz (1977), non publié.
- [95] KLUGE K., Communication Privée.
- [96] AYMAR M., Communication Privée.
- [97] AYMAR M., Communication Privée.
- [98] DESCLAUX J.P., Thèse de Doctorat d'Etat, Paris (1971), non publié.
- [99] LIBERMAN S. et al., C.R. Acad. Sci., B 286, 253 (1978).

- [100] VIALLE J.L., Thèse de Doctorat d'Etat, Université Paris XI, Orsay (1980).
- [101] DZUBA V.A. et al., Phys. Lett., A, 95A, 230-232 (1983).
- [102] LUNDBERG H., ROSEN A., Z. Phys. A, 286, 329 (1978).
- [103] JAIN R.K., AUSSCHNITT C.P., Opt. Lett., 2, n°5, 117 (1978).

REMERCIEMENTS

Cette thèse a été préparée au Laboratoire Aimé Cotton. Je remercie S. Feneuille et S. Liberman, Directeurs du Laboratoire Aimé Cotton, de m'y avoir accueillie.

Messieurs les Professeurs P. Jacquinot, J. Bayche et H. Stroke m'ont fait l'honneur d'accepter de faire partie du jury ; je les remercie vivement pour l'intérêt qu'ils manifestent ainsi à ce travail.

Monsieur le Professeur B. Sansal, malgré son éloignement géographique, a constamment suivi les progrès de cette thèse avec un grand intérêt. Il le montre encore en participant au jury. Je le remercie pour sa sympathie.

C'est sous la responsabilité de S. Liberman que ce travail a été entrepris. Je suis heureuse de lui exprimer toute ma gratitude pour les conseils avisés et les bienveillants encouragements qu'il n'a cessé de me prodiguer.

Une place particulière dans ces remerciements revient à J.-L. Vialle et H. T. Duong avec qui j'ai eu la grande chance de travailler depuis mon arrivée au laboratoire. Ils m'ont fait profiter quotidiennement de leur expérience et de leurs connaissances. Ce travail est aussi le leur. Malgré de nombreuses autres occupations, J.-L. Vialle a, de plus, assumé avec une extraordinaire disponibilité la lecture du manuscrit qu'il a grandement enrichi par ses remarques. Je lui en suis profondément reconnaissante.

Les expériences sur les isotopes radioactifs ont été menées en collaboration avec une équipe de chercheurs et de techniciens du Laboratoire René Bernas, équipe dirigée par Madame C. Thibault qui fait aussi partie du jury. Je tiens à souligner que cette collaboration m'a laissé le souvenir le plus agréable. Que tous en soient chaleureusement remerciés à travers C. Thibault et F. Touchard.

La mise au point du laser fonctionnant en modes bloqués doit tout à J. Pinard. Je le remercie de m'avoir initiée à son fonctionnement avec l'enthousiasme qui lui est habituel. Je ne saurais, non plus, oublier dans ces remerciements P. Juncar, J.-M. Saint-Jalm et C. Vialle avec qui j'ai eu l'occasion de travailler.

Je voudrais encore réserver une grande part de mes remerciements à l'ensemble du personnel technique et administratif du laboratoire pour sa précieuse assistance.

Enfin je remercie chaleureusement les personnes qui se sont chargées de la réalisation de ce mémoire : Madame G. Fontaine qui en a assuré avec soin la dactylographie dans des conditions difficiles, B. Demarets et H. Calvignac qui se sont chargés des illustrations les plus difficiles.

ANNEXE I

INDEX

High-resolution laser spectroscopy on the D_1 and D_2 lines of $^{39,40,41}\text{K}$ using RF modulated laser light

N Bendali, H T Duong and J L Vialle

Laboratoire Aimé Cotton†, CNRS II, Campus d'Orsay, Bâtiment 505, 91405 Orsay, France

Received 19 June 1981, in final form 3 August 1981

Abstract. Two natural polyisotopic potassium beams were illuminated respectively by a RF modulated and an unmodulated laser beam. The laser side band frequency is locked on an atomic frequency, while the unmodulated laser frequency is RF scanned. The RF accuracy of the frequency scale allows measurements to about 0.3 MHz of the hyperfine structures and the isotope shifts of the D_1 and D_2 lines of $^{39,40,41}\text{K}$. The results obtained are reported and compared to the previous ones.

1. Introduction

Systematic experimental studies of long series of radioactive isotopes produced on line with accelerators have been performed over the last few years (Ekström and Lindgren 1977, Otten 1977, Schinzler *et al* 1978, Bonn *et al* 1979). High-resolution laser spectroscopy on such long chains of isotopes gives information on nuclear properties through the determination of hyperfine constants, isotope shifts and nuclear spins. In the case of the alkali isotopes a very sensitive method based on optical pumping of an atomic beam followed by a magnetic selection of the atoms through an inhomogeneous magnetic field (Duong and Vialle 1974) has been developed. It was successfully applied to Na (Huber *et al* 1978), Rb (Thibault *et al* 1981a), Fr (Lieberman *et al* 1980), Cs (Thibault *et al* 1981b) and very recently to K (Thibault *et al* 1981c) isotopes on line with accelerators at CERN.

In this method the detection of the optical resonances is carried out not on the fluorescent light but on the atoms of the atomic beam which are ionised, mass separated and counted. For this reason the study of ^{40}K during the experiment at CERN was impossible because the expected signal from $^{40}\text{K}^+$ was several orders of magnitude weaker than the background signal due to the stable $^{40}\text{Ca}^+$ given by the ioniser. Therefore, a specific experiment remained to be done to measure the isotope shift $^{40}\text{K}-^{39}\text{K}$.

Most of the relevant hyperfine constants are known precisely (Fuller 1976); they can be used as a good test of the accuracy obtained with our method. Moreover, the isotope shift measurements, in the experiment at CERN, are referred to the most abundant stable isotope, ^{39}K . Therefore the hyperfine structure of its D_1 line was recorded many times at CERN, leading to a precise determination of the hyperfine constants: for the hyperfine constant of the $4p\ ^2P_{1/2}$ level of ^{39}K , our value $A_{39} (^2P_{1/2}) = 27.5 (0.4)$

† Laboratoire associé à l'Université Paris-Sud.

disagreed significantly with the only value quoted in the literature, $A_{39} (^2P_{1/2}) = 28.85 (0.30)$ (Buck and Rabi 1957). It then seemed necessary to measure again the hyperfine structure of the (^{39}K)D₁ line and to use for the frequency scanning a technique completely different from the one previously used at CERN (Huber *et al* 1978) in order to exclude possible systematic errors. This goal is achieved by the experiment described below; the results obtained for the hyperfine constants and isotope shifts of the three natural potassium isotopes ^{39}K , ^{40}K and ^{41}K are reported.

2. Principle of the experiment

Let us consider two isotopes, labelled 1 and 2, of the same element from which the atomic beams 1 and 2 are formed, respectively. The emitted light of a single-mode tunable dye laser is split into two laser beams. The first laser beam, modulated by a RF excited crystal, orthogonally intersects atomic beam 1. The frequency spectrum of this laser beam consists of a central frequency ν_L and several side band frequencies: $\nu_k = \nu_L + k\nu_{\text{RF}}$ ($k = \pm 1, \pm 2, \dots$), see figure 1. By tuning the laser frequency, a given side band frequency ν_{k_0} ($k_0 = -1$ in figure 1) can be locked onto the atomic frequency ν_1 of isotope 1 in atomic beam 1 by a feedback loop using the fluorescent light emitted by atomic beam 1.

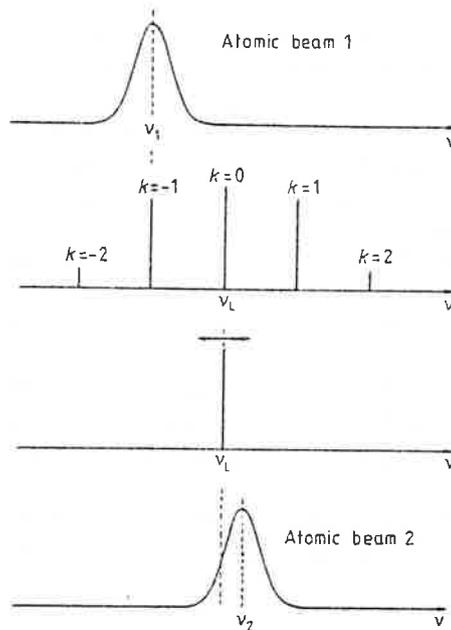


Figure 1. Principle of the experiment. The frequency of the laser side band k is $\nu_k = \nu_L + k\nu_{\text{RF}}$.

The second laser beam interacts at right angles with atomic beam 2. While ν_{k_0} is kept locked onto ν_1 , ν_{RF} and then ν_L are scanned until $\nu_L = \nu_2$ gives the maximum fluorescent signal from isotope 2 in atomic beam 2 with atomic frequency ν_2 . The frequency difference $\nu_1 - \nu_2$ can thus be measured very precisely, being equal to $k_0\nu_{\text{RF}}$.

3. Experimental set-up

The experimental set-up is shown schematically in figure 2. A commercial cw single-mode tunable dye laser (CR 599) is pumped by the red lines of a Kr^+ laser (CR 3000 K). As the wavelengths of the D₁ and D₂ lines of potassium are $\lambda_1 = 769.9$ nm and $\lambda_2 = 766.5$ nm, the correct dye to use is oxazine. The dye laser output is split into two beams.

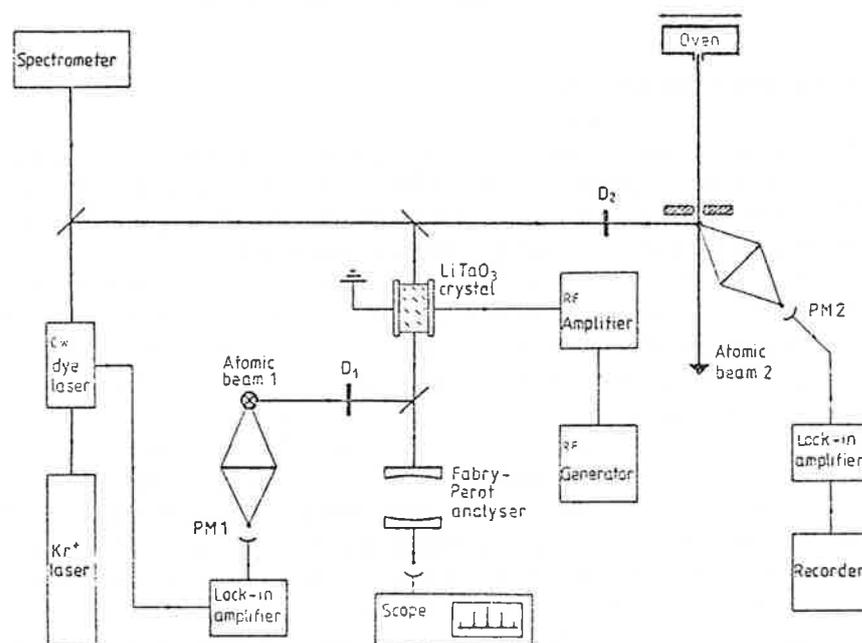


Figure 2. Detailed scheme of the experimental set-up.

The first one passes through a crystal of LiTaO_3 . This crystal is excited by a high-frequency electric field provided by a 50 W amplified RF generator. This laser beam is frequency analysed by a Fabry-Perot mode analyser whose output is displayed on an oscilloscope. The RF modulated laser beam interacts at right angles with a thermal atomic beam of natural potassium (atomic beam 1). The fluorescence of the beam is detected by a photomultiplier followed by a lock-in amplifier. Since the laser cavity length is modulated (≈ 160 Hz), the intensity of the fluorescent signal from the atomic beam is modulated too.

This modulation is detected via the lock-in amplifier. The output signal, that is, the derivative of the incoming fluorescent intensity, is used to lock the frequency of a given side band on the optical frequency of the desired hyperfine component.

The second laser beam interacts at right angles with a second atomic beam (atomic beam 2). Since the ^{40}K abundance in natural potassium is only 0.0118% special effort has been devoted to reducing the stray light: the laser light scattered by the windows and the light emitted by residual potassium vapour in the interaction region. This is achieved by surrounding this region with a carefully designed metallic black box cooled at liquid nitrogen temperature.

The fluorescent light of this atomic beam is detected by a sensitive photomultiplier (RCA C 31034) cooled down to -10°C , followed by a lock-in amplifier. The amplifier output signal is recorded as a function of the RF frequency.

For both atomic beams, the collimation ratio is approximately the same (about 80) and the line width of the resonance curves (FWHM) is about 13 MHz, partly due to the natural line width which is known to be 6 MHz, partly to residual Doppler broadening. The laser intensity at each atomic beam is adjusted by means of density attenuators D_1 and D_2 to avoid power broadening. A grating spectrometer and a potassium spectral lamp are used for coarse adjustment of the laser frequency.

4. Experimental procedure

Natural potassium has been used for the two atomic beams. Consequently, the three stable isotopes are present in both beams with their natural abundances (^{39}K : 93.10%; ^{40}K : 0.0118%; ^{41}K : 6.88%). For this reason the experimental procedure must be followed more carefully than explained above in § 2.

First, we take advantage of the presence of the same isotope in both beams to eliminate an eventual difference of the Doppler shifts. With the RF modulation off, the laser light on the atomic beam 1 is frequency locked on the maximum of the fluorescent signal. The oven of the atomic beam 2 is then translated, as indicated by the arrows on figure 2, until the signal given by the lock-in amplifier 2 goes to zero, corresponding to the maximum fluorescent signal of atomic beam 2. The Doppler shift is then the same in both atomic beams. The accuracy of this adjustment is better than 100 kHz.

On the other hand, the presence of all isotopes in both atomic beams is troublesome for the laser frequency locking technique. Let us return to the discussion of the principle of the experiment but now assuming that all isotopes are present in both beams (figure 3). With the RF modulation on, a side band frequency is locked on the atomic frequency ν_1 . Then, by changing the RF frequency, the laser frequency ν_L , that is the frequency of the central band, is progressively tuned to the atomic resonance ν_2 . During this scanning, ν_L also produces a fluorescent signal in the atomic beam 1, which superimposes in the detection on the detected fluorescent signal induced by the side band. Consequently, the locked side band frequency does not remain equal to ν_1 : it is shifted so that the total fluorescence is maximum. Fortunately, the smaller the abundance of isotope 2 relative to isotope 1, the smaller that shift is, and it is of course negligible for measurements on ^{40}K as isotope 2 with ^{39}K as isotope 1. Moreover, the laser side band frequency is, in all cases, unshifted at exact resonance, that is when $\nu_L = \nu_2$, on the atomic beam 2 (see figure 3). Therefore the interval between two exact resonances is not affected by this type of shift.

Finally it can be shown that, in the case of a symmetrical line shape and with the intensity of the central and side band kept constant during the tuning of the RF frequency, the frequency shift of the laser side band is an odd function of $\Delta\nu = k_0\nu_{\text{RF}} - (\nu_1 - \nu_2)$ (see figure 3). Then, this shift just results in broadening the resonance curve recorded on atomic beam 2 without any shift of the central frequency.

Therefore, to measure a given frequency interval, the condition required is simply that the fluorescence induced by the laser side band frequency, locked on ν_1 , is stronger than the fluorescence induced by the central band frequency, locked on ν_2 , to insure a stable locking. This is always possible provided the side band frequency is locked on the appropriate resonance and its intensity is raised, by increasing the input RF power on the crystal, to a higher value than the central band one. With our 50 W, up to 250 MHz, RF

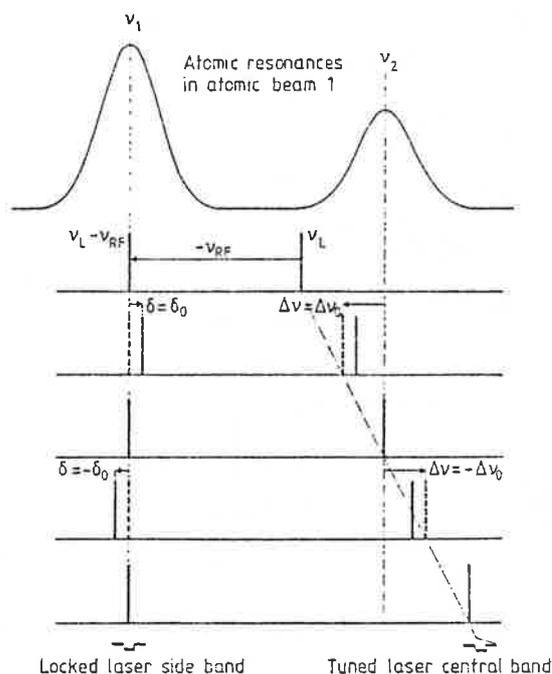


Figure 3. First experimental procedure. The laser side band k_0 ($k_0 = -1$ in the figure) is locked on the atomic frequency ν_1 . When the laser central band (frequency ν_L) is scanned over another atomic resonance (frequency ν_2), the laser side band is shifted (δ). This shift δ is zero for $\nu_L = \nu_2$ and is an odd function of $\Delta\nu = k_0\nu_{RF} + (\nu_2 - \nu_1)$ ($\Delta\nu = -\nu_{RF} + (\nu_2 - \nu_1)$ in the figure).

amplifier (figure 2) this is achieved for the first side bands ($k_0 = \pm 1$) in the range 10–250 MHz. It is also necessary to verify that no other optical resonance is simultaneously excited by any other side band. This is possible because the positions of all resonances are approximately known.

Up to this point the frequency of the side band is locked and the laser frequency ν_L , the same as the central band, is scanned by changing the RF modulation frequency applied to the crystal. This procedure has been used for all measurements on ^{39,40,41}K. For ³⁹⁻⁴¹K measurements the reverse procedure has also been used, as a check: the laser frequency ν_L is now locked on the optical resonance frequency in the atomic beam 2. Then the maximum fluorescent signal is also seen by the detector at atomic beam 1; consequently the output signal of the lock-in amplifier remains zero. When the RF frequency is scanned, the side band frequency is tuned over the atomic resonance ν_1 and the induced fluorescent signal is seen as a change in the output signal of the lock-in amplifier. If one is interested in the resonance line shape curve, the laser side band intensity has to be kept constant when scanning the RF frequency. This is obtained by adjusting the RF power. However this adjustment is not necessary if one is only interested in the exact position of the resonance, that is, when the output signal of the lock-in amplifier crosses zero. The disadvantage of this procedure compared to the first one, is that the noise in the recorded signal is produced by the total fluorescence induced by the central and the side bands. The advantage is that the observed resonance curve is unbroadened.

5. Results and discussion

5.1. D₁ line

Figure 4(a), (b) and (c) gives the relative positions of all hyperfine components of the three isotopes 39, 40 and 41, respectively.

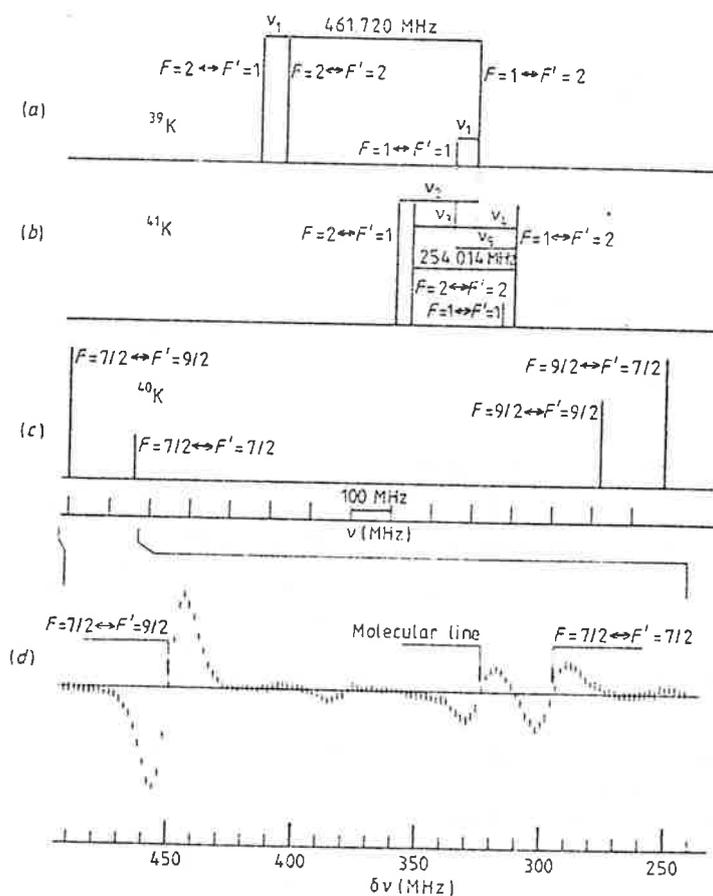


Figure 4. The hyperfine structures of the D_1 line of ^{39}K and ^{41}K are shown in (a) and (b) respectively. The measured frequency intervals are: $\nu_1 = 55.6$ (0.3) MHz, $\nu_2 = 188.4$ (0.3) MHz, $\nu_3 = 158.0$ (0.5) MHz, $\nu_4 = 96.0$ (0.3) MHz and $\nu_5 = 151.5$ (0.5) MHz. The hyperfine structure of the D_1 line of ^{40}K is shown in (c) with a typical recording (d) of a part of this structure. The zero of the frequency scale corresponds to the reference line ($F = 2 \leftrightarrow F' = 1$) of ^{39}K .

5.1.1. ^{39}K – ^{41}K . The measured intervals (ν_1 to ν_5) are indicated, with their errors, in the figure caption, together with the very precisely known hyperfine structure of the ground state.

For each frequency interval, when more than six separate measurements were made, the standard deviation was calculated. The quoted error (0.3 MHz) corresponds to twice the largest standard deviation. When only one measurement was made the quoted error was increased to 0.5 MHz. A larger frequency difference has never been observed between two measurements of a given interval. To avoid systematic errors we have taken the usual precautions: two different experimental procedures, as explained above, have been used. Moreover in some cases (ground-state hyperfine structure) our measurements can be compared with much more precise measurements obtained by other authors; in these cases the consistency is much better than our quoted error.

The relations $\nu_5 - \nu_4 = \nu_1$ and $\nu_3 + \nu_4 = \Delta\nu_{\text{HFS}}(^{41}\text{K})$ have been used as a test of the measurement accuracy. As can be seen, these relations are verified, within the errors.

The hyperfine constants A ($4^2P_{1/2}$), for ³⁹K and ⁴¹K, and the isotope shift are deduced from the measured intervals. They are reported in table 1 and compared to previous results. For the hyperfine constant A ($4^2P_{1/2}$) of ³⁹K our value, 27.80 (0.15) MHz, is in agreement with the one previously obtained at CERN by optical laser spectroscopy, 27.5 (0.4) MHz (Thibault *et al* 1981c). It is inconsistent with the only other result quoted in the literature, A_{39} ($4^2P_{1/2}$) = 28.85 (0.30) MHz (Buck and Rabi 1957).

Table 1. Results obtained in the D₁ line.

Isotope	A ($4^2P_{1/2}$) (MHz)		IS relative to ³⁹ K (MHz)	
	Our results	Other results	Our results	Other results
³⁹ K	27.80 (0.15)	28.85 (0.30) ^a	—	—
⁴⁰ K	-34.49 (0.11)	—	125.58 (0.26)	—
⁴¹ K	15.19 (0.21)	—	235.27 (0.33)	222 (9) ^b

^a Buck and Rabi (1957).

^b Wang and Yellin (1971).

5.1.2. ⁴⁰K. For the measurements involving the ⁴⁰K isotope, only the first experimental procedure has been applied, as explained above. The positions of the four hyperfine components are indicated in figure 4(c). It can be seen that all the ⁴⁰K components are far outside the ³⁹⁻⁴¹K structures, so that the experiment can be performed without using an enriched isotope sample. The ³⁹K hyperfine components used as a reference are the ($F = 2 \leftrightarrow F' = 1$) component for the low-frequency components of ⁴⁰K and the ($F = 1 \leftrightarrow F' = 2$) component for the high-frequency components of ⁴⁰K. Since the frequency intervals to be measured are in the range 250–500 MHz, the second side band ($k_0 = \pm 2$) has to be used and its frequency has been locked on the reference line. Figure 4(d) presents a typical recording of two components of the hyperfine structure of ⁴⁰K. A small, slowly varying, background due to ³⁹K and ⁴¹K fluorescence has been observed in DC detection, and then calculated for subtraction. One can notice on the recording a third unexpected resonance. It is probably due to molecules present in the atomic beam. Such molecular lines have been observed at several frequencies. We tried to measure the mass of this molecule by comparing the Doppler shifts for this line and for an atomic potassium line when the oven of the atomic beam is moved. The result is that the mass of this molecule is between 40 and 50 amu. Na₂ seems, then, to be a good candidate since Na is the most abundant impurity in our metallic potassium sample. Nevertheless, three hyperfine components of ⁴⁰K are identified and their frequencies measured (the fourth is strongly overlapped by a molecular line). Using the constant which is precisely known, by the magnetic resonance technique, A_{40} ($4s^2S_{1/2}$) = -285.731 (2) MHz (Eisinger *et al* 1952) and the three experimental values obtained, we deduced A_{40} ($4^2P_{1/2}$) and the isotope shift of ⁴⁰K relative to ³⁹K, by a least-squares fit. The results are given in table 1.

5.2. D₂ line

The relative positions of all the hyperfine components of the D₂ lines are shown in figure 5(a), (b) and (c).

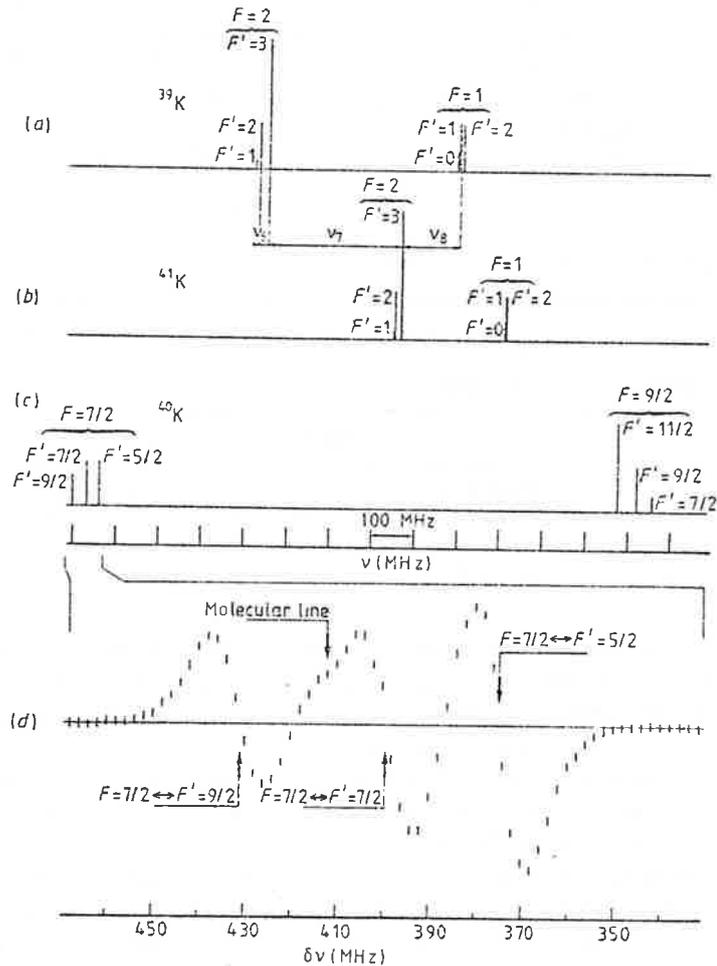


Figure 5. The hyperfine structures of the D_2 line of ^{39}K and ^{41}K are shown in (a) and (b), respectively. The measured frequency intervals are: $\nu_6 = 21.0$ (0.3) MHz, $\nu_7 = 308.05$ (0.30) MHz and $\nu_8 = 123.8$ (0.5) MHz. The hyperfine structure of the D_2 line of ^{40}K is shown in (c) with a typical recording (d) of a part of this structure. The zero of the frequency scale corresponds to the reference line ($F = 2 \leftrightarrow F' = 3$) of ^{39}K .

5.2.1. ^{39}K - ^{41}K . Since the excited state $4p^2P_{3/2}$ has a small hyperfine structure the components are not completely resolved. The hyperfine constants of the excited state have been determined with great accuracy by the level crossing technique (Schmieder *et al* 1968, Ney 1969). Therefore, the isotope shift is the only unknown quantity. For ^{39}K and ^{41}K , only three frequency intervals have been measured; they are indicated on figure 5 (ν_6 , ν_7 , ν_8). The numerical values of ν_6 , ν_7 and ν_8 are given in the figure caption with the errors. To get the exact frequency interval between the two components from the measured interval, a correction which takes into account the effect of overlapping by neighbouring resonances has been calculated and added.

The frequency interval

$$\begin{aligned} \nu_6 &= \Delta\nu_{39}(F' = 3 \leftrightarrow F' = 2) = 3A_{39}(4^2P_{3/2}) + B_{39}(4^2P_{3/2}) \\ &= 21.0 \text{ (0.3) MHz} \end{aligned}$$

has to be compared with

$$\Delta\nu_{39}(F' = 3 \leftrightarrow F' = 2) = 21.11 (0.19) \text{ MHz}$$

and

$$\Delta\nu_{39}(F' = 3 \leftrightarrow F' = 2) = 20.90 (0.36) \text{ MHz}$$

deduced, respectively, from the values of the hyperfine constants measured by Ney (1969) and by Schmieder *et al* (1968) (see table 2).

Table 2. Results obtained in the D₂ line.

Isotope	A (4 ² P _{3/2}) (MHz)		B (4 ² P _{3/2}) (MHz)		IS relative to ³⁹ K (MHz)
	Our results	Other results	Our results	Other results	Our results
³⁹ K	—	6.1 (0.1) ^a 6.13 (0.05) ^b	—	2.9 (0.2) ^a 2.72 (0.12) ^b	—
⁴⁰ K	-7.48 (0.06)	-7.59 (0.06) ^c	-3.23 (0.50)	-3.5 (0.5) ^c	126.43 (0.30)
⁴¹ K	—	3.40 (0.8) ^b	—	3.34 (0.24) ^b	236.15 (0.37)

^a Schmieder *et al* (1968).

^b Ney (1969).

^c Ney *et al* (1968).

From the frequency ν_7 and using the values of the hyperfine constants given by Ney (1969) for ³⁹K and ⁴¹K, one gets the isotope shift of ⁴¹K relative to ³⁹K in the D₂ line: $\text{IS}(\text{D}_2)^{41-39} = 236.15 (0.37) \text{ MHz}$.

5.2.2. ⁴⁰K. The hyperfine structure of the D₂ line of ⁴⁰K has been studied in detail. The positions of the six hyperfine components are indicated on figure 5(c). All these six components have been experimentally observed and their frequency intervals measured. The reference frequencies used are (a) for the low-frequency side, the ($F = 2 \leftrightarrow F' = 3$) hyperfine component of ³⁹K and (b) for the high-frequency side, a blend of the three unresolved components ($F = 1 \leftrightarrow F' = 0, 1, 2$) of ³⁹K. Therefore the last one is not well defined. Nevertheless, we measured the interval between these two references: $\nu_7 + \nu_8 = 431.85 (0.58) \text{ MHz}$ (see figure 5).

A typical recording of the three low-frequency hyperfine components is shown on figure 5(d). The background due to ³⁹K and ⁴¹K has been calculated and subtracted. A molecular line is also present in the middle of the structure so that a deconvolution has to be done to get the exact positions of the resonances.

$A_{40}(4^2P_{3/2})$ and $B_{40}(4^2P_{3/2})$, the isotope shifts of ⁴⁰K relative to ³⁹K in the D₂ line, as well as the frequency interval $\nu_7 + \nu_8$ between the two references of ³⁹K, are deduced from the positions of the six hyperfine components by a least-squares fit. For the quantity $\nu_7 + \nu_8$ we found $\nu_7 + \nu_8 = 432.2 (0.6) \text{ MHz}$ in agreement with our direct measurement. The isotope shift is obtained from our measurement by using the values of Ney (1969) and Schmieder *et al* (1968) for the hyperfine constants of the $4p^2P_{3/2}$ state of ³⁹K. All the results obtained on the D₂ line are given in table 2, where they are compared with the values obtained by other authors (Ney *et al* 1968). It can be seen that the agreement is always good.

6. Conclusion

The nuclear interpretation of these results will be discussed in our next paper together with the results obtained on radioactive isotopes. We present here some concluding remarks.

First, from the measured isotope shifts in both the D_1 and D_2 lines, we subtract the normal mass shift and get a residual isotope shift $\Delta\nu_R$ which is the sum of the specific mass shift and the volume shift. The results are the following:

$$(a) \text{ in the } D_1 \text{ line } \Delta\nu_R^{40-39}(D_1) = -10.79 (0.26) \text{ MHz}$$

$$\Delta\nu_R^{41-39}(D_1) = -30.50 (0.33) \text{ MHz}$$

$$(b) \text{ in the } D_2 \text{ line } \Delta\nu_R^{40-39}(D_2) = -10.55 (0.30) \text{ MHz}$$

$$\Delta\nu_R^{41-39}(D_2) = -30.80 (0.37) \text{ MHz.}$$

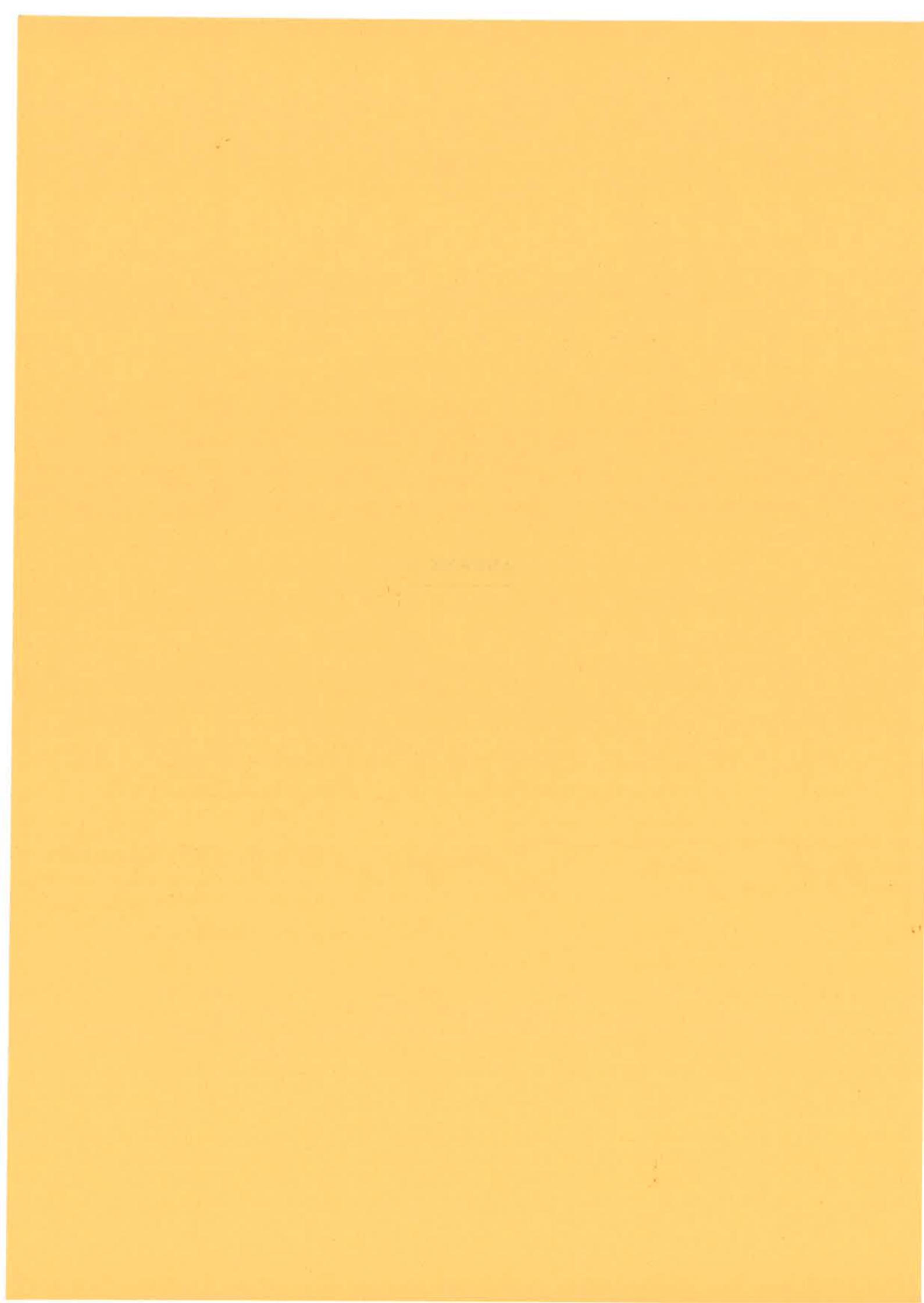
There is no observable difference for this residual shift between the D_1 and D_2 line. Relativistic Hartree-Fock calculations for the electron density at the nucleus show that the volume shifts in these two lines differ by less than 1% (Bauche and Fonseca 1981) and therefore the specific mass shifts in these two lines are also equal within the error bars.

Secondly, our experiment shows that it is possible to get an accuracy comparable to that obtained by level crossing techniques for the hyperfine constants of the excited state. This level of accuracy is also achieved in laser spectroscopy using two dye lasers and measuring their frequency beats (Nowicki *et al* 1978, Bekk *et al* 1979); but here we get the same accuracy in a somewhat simpler experimental set-up with a single dye laser.

References

- Bauche J and Fonseca L 1981 private communication
 Bekk K, Andl A, Göring S, Hanser A, Nowicki G, Rebel H and Schatz Z 1979 *Z. Phys. A* **291** 219-30
 Bonn J, Klempt W, Neugart R, Otten E W and Schinzler B 1979 *Z. Phys. A* **289** 227-8
 Buck P and Rabi I I 1957 *Phys. Rev.* **107** 1291-4
 Duong H T and Vialle J L 1974 *Opt. Commun.* **12** 71-4
 Eisinger J T, Bederson B and Feld B T 1952 *Phys. Rev.* **86** 73-81
 Eksström C and Lindgren I 1977 *Atomic Physics* vol 5, ed R Marrus, M Prior and H Shugart (New York: Plenum) pp 201-13
 Fuller G H 1976 *J. Phys. Chem. Ref. Data* **5** 835-1092
 Huber G *et al* 1978 *Phys. Rev. C* **18** 2342-54
 Liberman S *et al* 1980 *Phys. Rev. A* **22** 2732-7
 Ney J 1969 *Z. Phys.* **223** 126-38
 Ney J, Repnow R, Bucka H and Svanberg S 1968 *Z. Phys.* **213** 192-201
 Nowicki G, Bekk K, Göring S, Hanser A, Rebel H and Schatz G 1978 *Phys. Rev. C* **18** 2369-79
 Otten E W 1977 *Atomic Physics* vol 5, ed R Marrus, M Prior and H Shugart (New York: Plenum) pp 239-68
 Schinzler B *et al* 1978 *Phys. Lett.* **79B** 209-12
 Schmieder R W, Lurio A and Happer W 1978 *Phys. Rev.* **173** 76-9
 Thibault C *et al* 1981a *Phys. Rev. C* **23** 2720-9
 — 1981b *Nucl. Phys. A* **367** 1-12
 — 1981c to be published
 Wang E C and Yellin J 1971 *Phys. Rev. A* **4** 838-41

ANNEXE II



Classification
Physics Abstracts
32.80

Observation of optical pumping effects in collinear atomic beam - laser beam(s) interaction

N. Bendali, H. T. Duong, J. M. Saint Jalm and J. L. Vialie

Laboratoire Aimé Cotton (*), C.N.R.S. II, Bâtiment 505, 91405 Orsay Cedex, France

(Reçu le 9 mai 1983, accepté le 26 mai 1983)

Résumé. — La sensibilité de la méthode de détection des résonances optiques par observation de la fluorescence émise par un jet rapide en excitation colinéaire, est limitée par le pompage optique. Dans l'expérience décrite ici, nous tirons parti de ce pompage optique en détectant les résonances optiques à l'aide d'un second laser colinéaire, réalisant ainsi un gain sensible en signal de fluorescence. Les effets de la polarisation et de la puissance des faisceaux laser ont été étudiés aussi bien dans le cas de l'excitation d'atomes de Na par un seul laser que par deux lasers.

Abstract. — The detection of optical resonances by observation of the fluorescence light emitted from a fast atomic beam of Na interacting with a collinear laser beam is limited in sensitivity by optical pumping processes. In the experiment reported here, we take advantage of the optical pumping by using a second collinear laser beam, achieving then a gain in fluorescence signal. The effects of the lasers power and polarization on line shapes have been studied in the single laser excitation case as well as in the two laser beams one.

1. Introduction.

In recent years, a great deal of experimental effort has been devoted to systematic studies of hyperfine structure and isotope shifts of long isotopic sequences including short lived nuclides far from stability, in large part because of their importance to understanding nuclear properties [1]. Since most of the on line work is performed at isotope separator facilities, one has to deal with ion beams. Since resonance lines of ions are mostly inaccessible to CW single mode dye lasers, the ions have to be converted into neutral atoms. In the method of laser spectroscopy on fast atomic beam [2], the ion beam is very efficiently converted by charge exchange collisions into atomic beam with unchanged phase space distribution. The narrowing of the velocity spread resulting from the initial ion acceleration is then conserved and consequently the residual Doppler width may be within the natural linewidth. Therefore, in collinear excitation, most of the atoms of the beam may be simultaneously resonant with the laser light giving to the method high resolution and high sensitivity capabilities. Optical resonances are detected by observation of the fluorescence light. The highest sensitivity is obtained when the fluorescent photon

yield per atom is not limited by optical pumping processes. Resonances have been detected with an atomic flux of $10^5/s$ in the case of the strong resonance line $^1S_0-^1P_1$ of BaI, for isotopes having no hyperfine structure [3]. If there is a hyperfine structure in the ground state, the atoms are removed from the absorbing ground state level within a few optical pumping cycles, thus limiting the fluorescence yield of the experiment to a few photons per atom. Instead of bearing with it, we proposed to take advantage of the optical pumping to detect optical resonances by means of a second collinear laser beam acting as a detector of the pumping process [4]. The experiment reported here is intended to check the gain in sensitivity obtained with this method when applied to a sodium atomic beam.

2. Experimental conditions.

Figure 1 presents a schematic diagram of the apparatus. The Na⁺ ions are produced at the oven exit by ionization of the Na vapour on the inner surface of a tantalum tube heated by d.c. current up to about 1 200 °C [5]. After acceleration up to 5 kV and focusing by an einzel lens, the ion beam is deflected by 10° in an electrostatic parallel-plate deflector and set collinear with the laser beam. The fast atomic beam is obtained

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

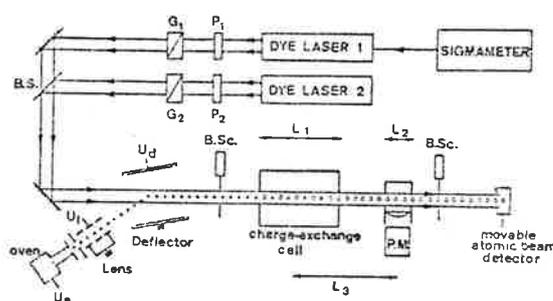


Fig. 1. — Experimental set-up.

by charge transfer collisions in a cell of recycled sodium vapour [6, 7]; the vapour pressure at the centre of the cell is around 10^{-3} torr. The geometrical factors are the length of charge exchange cell ($L_1 = 26$ cm), the length of fluorescence observation zone ($L_2 = 6$ cm), the distance between the centres of these two zones ($L_3 = 35$ cm in a first set of experiments and $L_3 = 60$ cm afterwards). Intensities of ion and neutral beams are monitored by Faraday cups; their shapes are controlled by two beam scanners. Beam scanners are also useful to finely adjust the collinearity of the fast atomic beam with the laser beam.

The dye lasers are CW ones single mode and tunable (Coherent Radiation 599 Model). One of these lasers is frequency piloted by a sigmometer [8]. Frequency sweep of the other one is done by the standard Coherent Radiation scanning system. With respect to the ion beam, each laser beam can be sent either co- or counter propagating. Although we have tested Doppler tuning by varying the atomic beam velocity by means of a post acceleration voltage applied to the charge exchange cell, we prefer to scan the laser frequency with the help of the sigmometer. Moreover in the experiments using two different laser beams (see below) the two laser frequencies must be independently varied and velocity tuning is therefore unadequate. For each laser beam a half-wave plate $P_{1,2}$ and a Glan-Thomson prism $G_{1,2}$ allow us to adjust the polarization direction and the intensity of the laser light. The two laser beams are superposed on a dichroic mirror. Atomic fluorescence is detected by a cooled photomultiplier. No photon counting technique has been used since the intensity of the atomic beam is in the range of 10^{10} particles/s. The background, resulting essentially from laser stray light, is reduced by a carefully designed blackened observation zone.

3. Fluorescence signal observed with one collinear laser beam.

The hyperfine structure (hfs) of the D_1 line is well known, it is reproduced in the insert of figure 2. Figure 2 also shows a scan of the D_1 line obtained with a $100 \mu\text{W}$ linearly polarized laser beam. On the low frequency side of each peak appears a small satellite resonance, labelled (a). It corresponds to the

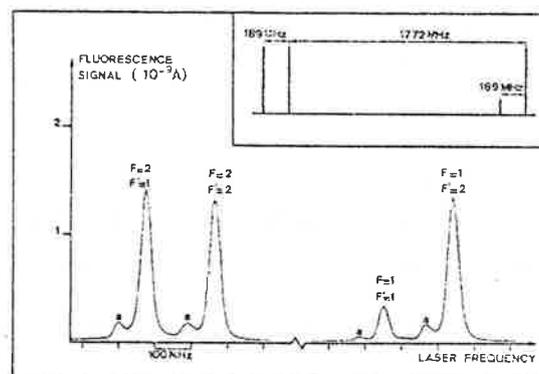


Fig. 2. — Fluorescence signal as a function of the frequency, in the D_1 line, observed with one collinear laser beam.

inelastic charge transfer *via* the $3p$ doublet [9]. The frequency difference between one peak and its satellite (~ 70 MHz) reflects an energy loss of about 2 eV, corresponding to the $3p$ - $3s$ energy difference.

The observed relative intensities of the four hyperfine components correspond to the theoretical ones. The linewidth obtainable in collinear laser spectroscopy has been discussed in details [10]. In our case we measured a frequency width (FWHM) of 28 MHz, comparable to the best results reported by Anton *et al.* [2] for sodium fast beams. This linewidth is mainly due to the initial kinetic-energy spread of the ions before acceleration. The energy spread corresponding to a width of 28 MHz is 0.7 eV; it is larger than the thermal spread calculable for a temperature of $1\ 200$ °C of the ion source and is probably due to the heating d.c. voltage (~ 2 V) applied to the tantalum tube. One observes, indeed, that the linewidth of the resonances increases very rapidly with the heating current intensity. As the light power is increased, the resonances broaden (see Fig. 3). This broadening is a consequence of the hyperfine optical pumping processes occurring during the atoms flight from the charge-exchange cell to the detection zone; this pumping transfers the atoms from the resonant hyperfine ground level to the non resonant one. Its efficiency is maximum at exact resonance and decreases with laser detuning; therefore, in the detection zone, the population of the resonant ground level is minimum at exact resonance. This explains the observed line broadening. It occurs at low laser power (< 1 mW) for which the usual power broadening is negligible. At further increase of the light power each fluorescence line exhibits a dip at exact resonance. For the $F = 1 \rightarrow F' = 2$ transition the dip is easily observable and the signal falls down to zero with increasing laser power. For the three other components, $F = 1 \rightarrow F' = 1$ and $F = 2 \rightarrow F' = 1, 2$, the situation is more complicated since for each of these resonances atoms in one or two Zeeman sublevels cannot be excited. In order to clearly observe the dips, one has to perform the experiment in zero magnetic field, thus avoiding a mixing of Zeeman

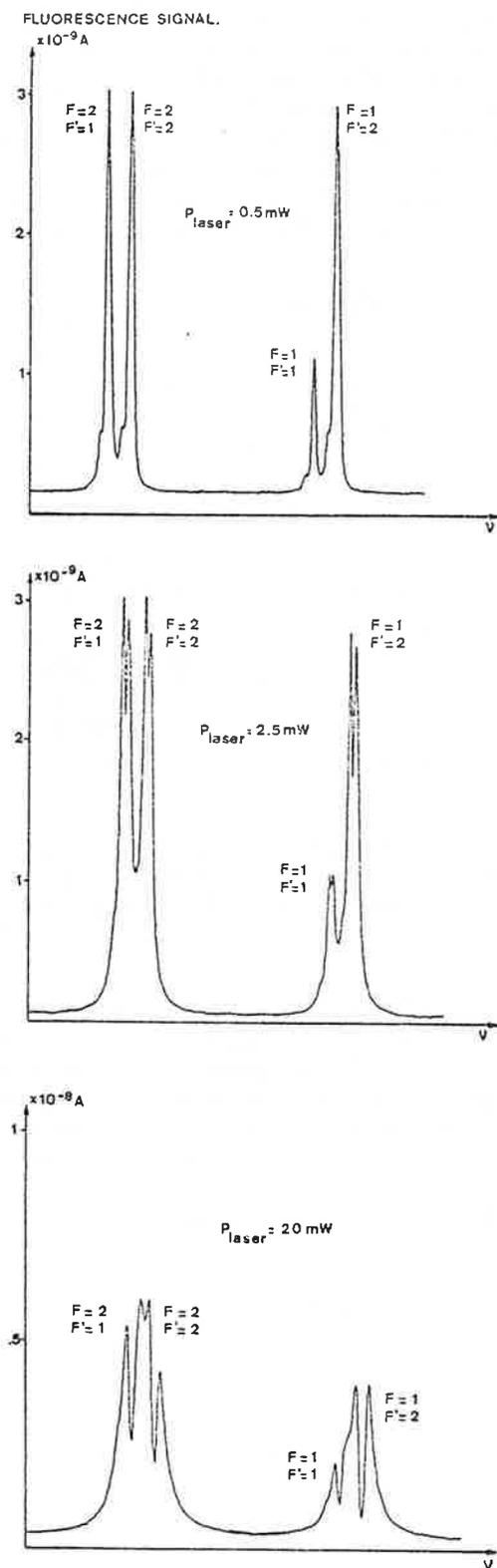


Fig. 3. — Effect of an increasing light intensity on the lineshape in the D₁ line (cancelled magnetic field).

states induced by the earth magnetic field. The curves shown on figure 3 are recorded with cancelled magnetic field. Due to the imperfect cancellation of the field,

at very high laser power, the dips are less pronounced for these three components than for the $F=1 \rightarrow F'=2$ one.

Figure 7B shows a scan of a part of the D₂ line (low frequency components) at low laser power (100 μ W). Due to the residual Doppler width (28 MHz) the structure of the excited state is not completely resolved. Moreover the presence of the satellite resonances, mentioned above, may blur the structure : in particular, for copropagating beams, the satellite line corresponding to the largest component $F=2 \rightarrow F'=3$ falls just in between the two components $F=2 \rightarrow F'=1,2$. This difficulty is overcome by using counter propagating beams. The resolved h.f. components are observed with the expected intensities.

As the light power is increased, only the transition $F=2 \rightarrow F'=3$, for which no h.f. optical pumping occurs, can be seen. For this transition one observes the effects of power broadening and optical saturation. For laser power higher than 10 mW the fluorescence does not increase much more, indicating that the power broadening (i.e. the Rabi frequency) is of the order of the Doppler width.

4. Fluorescence observed with two collinear laser beams.

Two laser beams are now aligned on the fast atomic beam. The first one, linearly polarized and at a moderate power, is frequency scanned across the D₁ line while the frequency ν_2 of the second laser is locked to the hyperfine transition $F=2 \rightarrow F'=3$ of the D₂ line. The fluorescence induced by this second laser gives a measurement of the population of the $F=2$ hyperfine ground level. When the variable frequency ν_1 is tuned to the transitions $F=2 \rightarrow F'=1,2$, hyperfine optical pumping along the beam transfers the atoms to the non resonant ground level $F=1$ and the detected fluorescence light decreases. On the other hand, when the variable frequency ν_1 is tuned to the transitions $F=1 \rightarrow F'=1,2$, optical pumping along the beam increases the population of the $F=2$ hyperfine ground level and the detected fluorescence increases. Figure 4 shows a spectrum of the D₁ line obtained by this method. As expected two positive and two negative peaks are obtained. This method is very similar to the « in flight » saturated absorption spectroscopy on fast ion beams developed by Beguin-Renier *et al.* [11]. The frequency width of the observed resonances depends on the power of the two lasers. For moderate powers (~ 1 or 2 mW) of both laser beams, the observed linewidth (~ 24 MHz) falls below the Doppler width of the beam. For a broad longitudinal beam velocity distribution, one expects that the ultimate width available with this method would be twice the natural linewidth ($2\gamma=20$ MHz in our case). One can also notice, in figure 4, that the satellite resonances do not appear on the spectrum recorded with this method, since they correspond to slower atoms which are off-resonance with the fixed laser. The scan in figure 4

is obtained with high power (30 mW) for the fixed laser. For the negative resonances the system is a three level system with a common level in the ground state (see insert of Fig. 4). Due to the high power of laser 2, the level of the ground state is split into a doublet arising from dynamic Stark effect [12, 13]. This doublet is visible on the recording for each negative peak. It disappears when the light power of laser 2 decreases below 10 mW. This is consistent with the observations reported above (fluorescence of the D_2 line with one laser). For the positive resonances, one has a four level system without common level (see insert of Fig. 4).

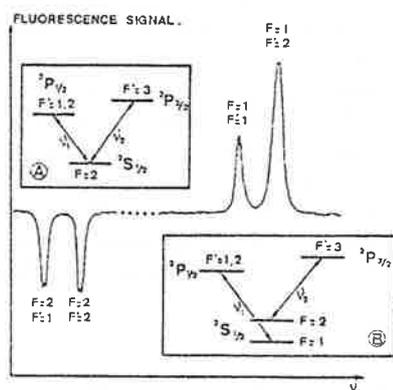


Fig. 4. — Fluorescence signal as a function of the frequency ν_1 , in the D_1 line, observed with two collinear laser beams.

Therefore, no doublet is observed even with 30 mW power for laser 2. Since the laser power density seen by the atoms is not the same everywhere, and also for reasons due to Zeeman degeneracy [14], it is impossible, with this set-up, to draw more quantitative conclusions about power effects. As an other consequence of the three level structure of the system with a common level in the ground state, the amplitudes and widths of the negative peaks depend strongly on the relative polarizations of the two laser beams. The effect is

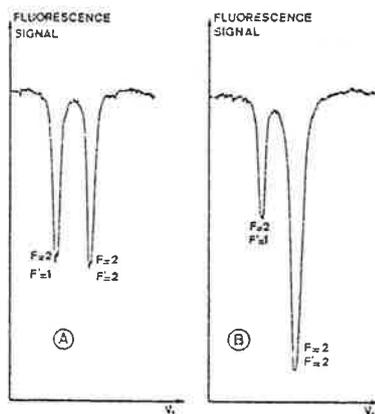


Fig. 5. — Effect of the relative polarizations of the two laser beams : (A) parallel polarizations. (B) orthogonal polarizations.

obvious on figure 5 : one recording is obtained with parallel polarizations, the other one with orthogonal polarizations, all parameters being unchanged. In the same way, the frequency of the scanned laser beam can be tuned across the D_2 line. As for the D_1 line, positive and negative peaks are observed, as shown on figure 6. The two lasers are oscillating at moderate power (~ 3 mW). The two hyperfine component

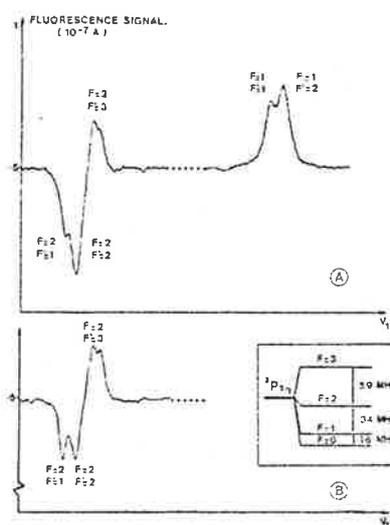


Fig. 6. — Fluorescence signal as a function of the frequency ν_1 , in the D_2 line, observed with two collinear laser beams : (A) orthogonal polarizations. (B) parallel polarizations.

$F = 2 \rightarrow F' = 1, 2$ appear as negative peaks, as expected. When the variable frequency is tuned to $F = 2 \rightarrow F' = 3$, the atomic transition is excited by the two lasers and the fluorescent light increases. For this component, the signal is comparable (in width and amplitude) to the one obtained when using only laser 1.

All three hyperfine components are now resolved.

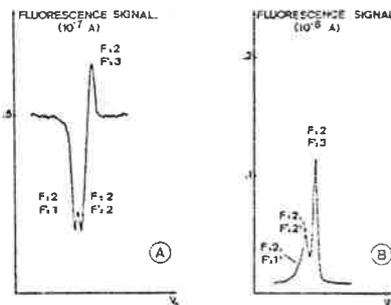


Fig. 7. — Comparison of the fluorescence intensities, at the same resolution, in the low frequency components of the D_2 line. The geometry with $L_3 = 35$ cm has been used : (A) the atomic beam is excited by two collinear laser beams (~ 3 mW). (B) the atomic beam is excited by one collinear weak intensity ($\sim 100 \mu\text{W}$) laser beam.

To get the same resolution with one laser beam, one has to use at most 100 μW light intensity, therefore reducing the fluorescent light seen by the photomultiplier. A comparison of vertical scales on figures 7A and 7B demonstrates a gain of at least 30 for the signal, by using two laser beams. However, the observed gain is obtained with a 30 times more intense laser light, and therefore the noise resulting from stray light is $\sqrt{30}$ more important. We intend to check the gain in signal to noise ratio obtainable with this method in the case of very weak atomic beam.

5. Concluding remarks.

We have shown that, in the case of strong optical pumping, gain in sensitivity is achieved using two collinear laser beams.

In this scheme, the detection zone can be further downstream from the charge exchange cell. The needed light intensity for the pumping beam may be then consequently reduced. Furthermore, between the two zones, one can perform magnetic resonance experiments as it will be illustrated in a following paper.

References

- [1] OTTEN, E. W., *Nucl. Phys. A* **354** (1981) 471c;
JACQUINOT, P., KLAPISCH, R., *Rep. Prog. Phys.* **42** (1979) 773.
- [2] ANTON, K. R., KAUFMAN, S. L., KLEMP, W., MORUZZI, G., NEUGART, R., OTTEN, E. W. and SCHINZLER, B., *Phys. Rev. Lett.* **40** (1978) 642.
- [3] MUELLER, A. C., BUCHINGER, F., KLEMP, W., OTTEN, E. W., NEUGART, R., EKSTRÖM, C., HEINEMEIER, J., Submitted to *Nucl. Phys. A* (1982).
- [4] DUONG, H. T., VIALLE, J. L., *C.R. Hebd. Sean. Acad. Sci.* **290B** (1980) 533;
DUONG, H. T., VIALLE, J. L., *J. Physique Lett.* **41** (1980) L-407.
- [5] RAMSEY, N. F., *Molecular Beams* (Clarendon Press, Oxford) 1956, p. 379.
- [6] BACAL, M., REICHEL, W., *Rev. Sci. Instrum.* **45** No 6 (1974) 769.
- [7] BACAL, M., TRUC, A., DOUCET, H. J., LAMAIN, H., CHRÉTIEN, M., *Nucl. Instrum. Methods* **114** (1974) 407.
- [8] JUNCAR, P., PINARD, J., *Opt. Commun.* **14** (1975) 438.
- [9] ANTON, K. R., KAUFMAN, S. L., KLEMP, W., NEUGART, R., OTTEN, E. W., SCHINZLER, B., *Hyperfine Interactions* (North Holland Publishing Company) **4** 1978, p. 87.
- [10] KAUFMAN, S. L., *Opt. Commun.* **17** (1976) 309.
- [11] BEGUIN-RENIER, F., DESEQUELLES, J., GAILLARD, M. L., *Phys. Scr.* **18** (1978) 21.
- [12] DELSART, C., KELLER, J. C., *J. Phys. B* **9** (1976) 2769.
- [13] CHEBOTAEV, V. P., *Topics in Applied Physics*, edited by K. Shimoda (Springer Verlag, Berlin) **13** 1976, p. 201.
- [14] DELSART, C., KELLER, J. C., *J. Phys. B* **13** (1980) 241-252.

ANNEXE III

DE QUINCY

1800-1801

Classification
 Physics Abstracts
 32.80B

Two methods for nuclear spin determination in collinear laser spectroscopy : classical r.f. magnetic resonance and observation of the Larmor precession (*)

N. Bendali, H. T. Duong, J. M. Saint-Jalm and J. L. Vialle

(**) Laboratoire Aimé Cotton, CNRS II, Bâtiment 505, 91405 Orsay, France

(Reçu le 22 juillet 1983, accepté le 7 novembre 1983)

Résumé. — Nous décrivons des expériences de mesure de spin nucléaire, réalisées sur un jet atomique rapide de Na excité colinéairement par un laser à colorant continu et monomode. Deux méthodes ont été employées. Dans l'une d'elles, on fait interagir un champ magnétique statique H_0 avec les atomes du jet dont les moments magnétiques ont été préalablement alignés par le pompage optique provoqué par la lumière. L'état magnétique du système atomique à la sortie du champ magnétique est analysé par l'intermédiaire de la fluorescence induite par le laser. Lorsque l'on fait varier l'amplitude de H_0 , le signal de fluorescence présente une structure de franges qui est due à la précession de Larmor des moments magnétiques autour de H_0 ; cette structure dépend donc du spin nucléaire des atomes. Les signaux enregistrés pour différentes orientations relatives de H_0 et de la direction de polarisation de la lumière s'accordent avec les résultats de calculs analytiques. La deuxième méthode est la méthode de résonance magnétique classique en présence d'un champ statique et d'un champ radiofréquence. A cause du caractère monocinétique de notre jet atomique rapide, nous avons pu observer, en champ r.f. fort, les profils de raies de résonance prévus par la théorie de Rabi et Majorana.

Abstract. — Measurement of nuclear spin in the collinear laser spectroscopy method has been investigated using a fast sodium atomic beam excited collinearly by a C.W. single mode dye laser beam. The atomic magnetic moments are first aligned by optical pumping process, then they interact with a static magnetic field H_0 . The magnetic alignment of the atomic system just at the exit of the magnetic field is monitored by the laser induced fluorescence. Upon varying the amplitude of H_0 , the fluorescence signal presents a fringed structure. This structure is due to the Larmor precession of the aligned magnetic moments around H_0 , and therefore it is a signature of the spin involved. The modulation patterns corresponding to different relative orientations of H_0 and light polarization direction, are fitted by an analytical formula. In a second step, a classical magnetic resonance experiment with a static magnetic field and a radiofrequency field has been performed. The monocinetic character of our fast atomic beam allowed us to observe, even at high r.f. power, resonances line shapes in agreement with the Majorana formula.

1. Introduction.

From the beginning of Nuclear Physics, the hyperfine structure (hfs) and isotope shift (IS) of atomic spectra were an essential source of information on nuclear ground-state spins, electromagnetic moments and charge radii [1]. Recently, the method of collinear laser spectroscopy has shown to be very fruitful in this field [2, 3]. The extraction of nuclear quantities from the experimental data of hfs and IS, requires the knowledge of the nuclear spin. Till now several methods have been reported for nuclear spin assignment in collinear spectroscopy : count of the number of the observed hyperfine components, or measurement of their intensity ratio [4], or application of the Landé interval rule. These spin assignment procedures may lead to some-

what ambiguous results in the case of either large spin values or overlapping of hfs components. This difficulty can be generally overcome by studying a second optical transition of either the neutral or the ionized element in question [4, 12, 13]. Nevertheless it may be interesting in some particular cases to directly measure the nuclear spin.

In the present paper, we report on the possibility of adapting the collinear laser spectroscopy method to the measurement of nuclear spin by means of a r.f. magnetic resonance experiment. A preliminary experiment has been performed on a stable ^{23}Na sample before the extension of the method to radioactive isotopes produced by on-line separators. At the same time, we have studied the influence of a static magnetic field on the fluorescence signal emitted from a fast atomic beam collinearly excited. When the amplitude of the magnetic field is varied, it turns

(*) Grant D.R.E.T. n° 80/654.

(**) Associated to the university of Paris-Sud.

out that the fluorescence signal presents a fringed pattern due to the Larmor precession of the atomic magnetic moments about the static field. The measurement of the period of this modulation, as well as the r.f. magnetic resonance method, leads to the determination of the nuclear spin.

2. Description of the set-up.

A schematic view of the set-up is represented in figure 1.

The apparatus is about the same as the one used for previous measurements and a detailed description can be found in reference 5. The sodium ions are produced by surface ionization of the metallic vapour. After acceleration, the beam is deflected to propagate collinearly with the light beam of a single mode C.W. dye laser. The ion beam is then converted into a neutral fast atomic beam by charge-transfer in a Na-vapour cell [6, 7].

The neutral atomic beam emerging from the cell, is quasi-monoenergetic. The atoms fly then through a region of about 25 cm where they interact with static and r.f. magnetic fields. Two rotatable Helmholtz coils produce the homogeneous static magnetic field H_0 ; the direction of H_0 can be rotated in the plane perpendicular to the laser beam. The r.f. magnetic field is produced by a 10 cm-long solenoid, centred on the atomic beam. Therefore, the r.f. magnetic field seen by the atoms is always orthogonal to H_0 . To precisely control all the different parameters of the experiment, the earth magnetic field has been carefully cancelled by means of electrical wire loops, surrounding the whole atomic beam set-up. Furthermore, the region of interaction with the magnetic fields is shielded by a mu-metal sheet.

The laser system is constituted by a commercial C.W. dye laser (CR599) pumped by a Kr^+ laser (CR3000K). Its frequency is scanned step by step and servocontrolled by a signameter [8]. The laser light intensity and polarization are adjusted by means of a half-wave plate P and a Glan-Thomson prism G. The laser light is linearly polarized in the vertical direction. The fluorescence is collected by a spherical lens and it is detected by a cooled photomultiplier.

3. Static field experiment.

3.1 PRINCIPLE OF THE EXPERIMENT. — In a first step, we have studied the influence of a static magnetic field on the fluorescence signal emitted by the atomic beam. The optical pumping process which occurs from the centre of the neutralization cell (zone I in figure 2) produces a change in the relative population of Zeeman sublevels, resulting in an alignment of the magnetic moment of the atoms [14, 15]. When the atoms are dived in the magnetic field (zone II), the magnetic moment precesses around H_0 , with an angular velocity proportional to the static field amplitude. The magnetic alignment of the atomic system just at the exit of the magnetic field (zone III) is monitored by the fluorescence induced by the laser light.

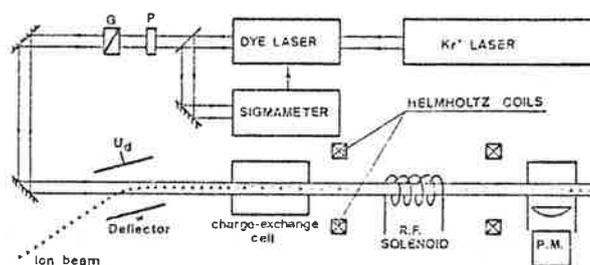


Fig. 1. — Detailed scheme of the experimental set-up.

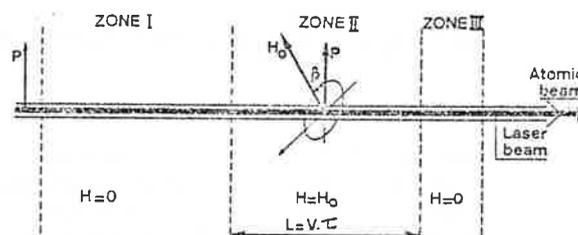


Fig. 2. — Geometrical parameters of the experiment with the static magnetic field. Zone I starts at the centre of the neutralization cell, where the neutral atomic beam is created. The atomic fluorescence is detected at the end of zone III. The static magnetic field is assumed to be constant all over zone II ($H = H_0$) and zero outside. The atomic velocity is $v = 2 \times 10^5$ m/s, and the length L of zone II is of the order of the diameter of the Helmholtz coils (23 cm).

When the amplitude of H_0 is varied, the fluorescence signal exhibits fringes due to the Larmor precession. This fringed pattern depends strongly on the orientation of the static magnetic field, relatively to the direction of the light polarization.

3.2 EXPERIMENTAL PROCEDURE AND RESULTS. — We have studied the Na D_1 -line and, more particularly, the $^2S_{1,2}, F = 1 \rightarrow ^2P_{1,2}, F' = 1$ and $^2S_{1,2}, F = 2 \rightarrow ^2P_{1,2}, F' = 1$ hyperfine components. The alignment of the magnetic dipoles of the atoms is easier to observe if some Zeeman sublevels of the involved ground-state hyperfine level cannot be excited by the laser light. For instance, for the transition $F = 1 \rightarrow F' = 1$ with a Π polarized optical excitation, the Zeeman sublevel $F = 1, m_F = 0$ is not excited (forbidden transition), while the two other ones ($F = 1, m_F = \pm 1$) are depleted.

The laser power must be sufficient for producing an efficient pumping of the atoms in the region I (Fig. 2); on the other hand, the light power must not be too high not to destroy the magnetic dipole alignment obtained at the exit of the static magnetic field region, during the atoms flight through region III, before reaching the point where the atomic fluorescence is detected (region III is of course much shorter than region I). With our set-up the suitable range for the laser power runs from 0.5 mW to 5 mW.

Experimentally, with the static magnetic field value set to zero, the laser frequency is tuned to the studied hyperfine component and the earth magnetic field is carefully cancelled. The direction of the magnetic field H_0 is then set to a precise angle β ($\beta = 30^\circ, 60^\circ, 90^\circ$) and its amplitude is continuously swept. Figures 3 and 4A show the signals recorded for the different values of β , when the laser frequency is tuned to the two hyperfine transitions $F = 2 \rightarrow F' = 1$ (Fig. 3) and $F = 1 \rightarrow F' = 1$ (Fig. 4A).

3.3 THEORETICAL CONSIDERATIONS. — We have developed a simplified theoretical model in order to explain the different features presented by the recordings of the fluorescence signal.

The atomic beam is divided into three regions (Fig. 2) : in the first one, the atomic system interacts only with the laser light ; in region II, for the sake of simplicity, the action of the laser light is neglected, and we just take into account the influence of the static magnetic field which is assumed to be homo-

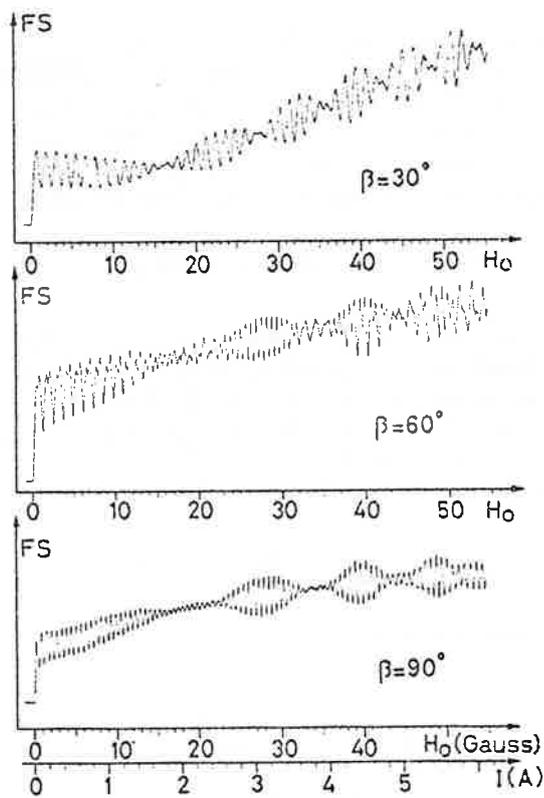


Fig. 3. — Fluorescence signal versus the static magnetic field amplitude in the case of the $F = 2 \rightarrow F' = 1$ hyperfine transition for three particular values of the angle β . The signal was recorded as a function of the current intensity I in the Helmholtz coils. The magnetic field scale has been adjusted to fit the experimental curves with the theoretical ones (see Fig. 5). The best fit is obtained for $H_0/I = 8.93$ G/A. At the centre of the coils a direct measurement gave $H/I = 10$ G/A but here, as H_0 is the mean value of the magnetic field over zone II, it is reasonable to get a slightly lower result.

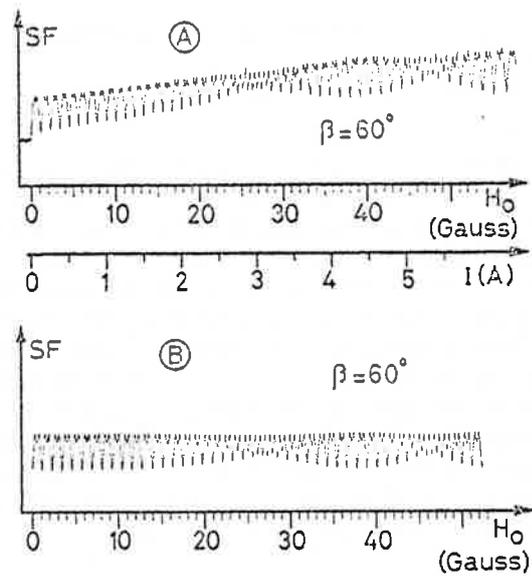


Fig. 4. — A. Fluorescence signal recorded as a function of the static magnetic field amplitude in the case of the $F = 1 \rightarrow F' = 1$ hyperfine transition. The magnetic field scale has been adjusted in the same way as in figure 3. B. Corresponding theoretical fluorescence signal plotted versus the static magnetic field. For this calculation, the flight time τ through zone II has the same value as in figure 5 ($\tau = 1.2 \mu s$).

geneous all along this part of the atomic beam. The magnetic interaction lasts during a time interval τ which is about 10^{-6} s in our experimental conditions. Immediately downstream, the distribution of ground-state sublevel populations is analysed by monitoring the fluorescence light (region III is assumed to have a negligible length).

Let us take the case of the hyperfine transition $F = 2 \rightarrow F' = 1$, excited by a linearly polarized laser light. The Zeeman optical pumping process produces an accumulation of the atoms in the sublevels $F = 2, m_F = \pm 2$. The density matrix of the atomic system at the entrance of the magnetic field region takes the form

$$\rho(0) = \rho_{11} I + (\rho_{22} - \rho_{11}) \begin{pmatrix} 1 & & & 0 \\ & 0 & & \\ & & 0 & \\ 0 & & & 1 \end{pmatrix} + (\rho_{00} - \rho_{11}) \begin{pmatrix} 0 & & & 0 \\ & 0 & & \\ & & 1 & \\ 0 & & & 0 \end{pmatrix} \quad (1)$$

where ρ_{ii} is the population of the Zeeman substate

labelled « i ». In the following, we shall write :

$$\Delta\rho_0 = \rho_{00} - \rho_{11} \quad \text{and} \quad \Delta\rho_2 = \rho_{22} - \rho_{11}.$$

The first term of ρ does not vary under the action of the magnetic field H_0 . Hence, this term results in a constant background. The fluorescence signal which is detected, is related to the evolution of the second and third terms of equation (1), in the presence of the magnetic field. In the general case, the directions of light polarization and magnetic field make an angle β . In the region I ($H_0 = 0$), the quantization axis is the direction of light polarization. In the region II, it is more convenient to write the density matrix in a new coordinate frame where the quantization axis is the direction of H_0 . The rotation transforms the density matrix $\rho(0)$ into $\rho'(0)$ with :

$$\rho'(0) = M(\beta) \cdot \rho(0) \cdot M(\beta)^*$$

where $M(\beta)$ is the rotation matrix about the laser beam axis, through the angle β .

In this new coordinate frame, $\rho'(t)$ is stationary, and its evolution under the action of the magnetic field is given by the Schrödinger equation :

$$i\hbar \frac{d}{dt} \rho'(t) = [\mathcal{H}, \rho'(t)] \quad (2)$$

where \mathcal{H} is the effective Hamiltonian for weak fields. By integration, one finds that the different components of $\rho'(t)$ will satisfy :

$$\rho'_{ij}(t) = \rho'_{ij}(0) \exp\left(-\frac{i}{\hbar}(E_i - E_j)t\right) \quad (3)$$

where $\rho'_{ij}(0)$ is the (ij) component value at the entrance of the magnetic field, and E_i the energy of the Zeeman sublevel with magnetic quantum number i .

The Hamiltonian eigenvalues E_i can be calculated by means of the Breit-Rabi formula [4]. Let us take

the energy of the $|2, 0\rangle$ level as the origin of the energy scale. All terms of order higher than 2 being neglected, the Breit-Rabi formula yields :

$$\begin{aligned} E_{\pm 2} &= \pm 2\hbar\omega_0 - 4\hbar\Delta\omega_0 \\ E_{\pm 1} &= \pm\hbar\omega_0 - \hbar\Delta\omega_0 \\ E_0 &= 0 \end{aligned} \quad (4)$$

where :

$$\hbar\omega_0 = \frac{x}{2I+1} \Delta W - \frac{\mu_I}{I} H_0$$

and

$$\hbar\Delta\omega_0 = \frac{x^2}{(2I+1)^2} \Delta W$$

with :

$$x = \frac{\mu_I I - \mu_J J}{\Delta W} H_0,$$

ΔW being the hyperfine energy splitting.

After a flight time τ , the atoms get out of the magnetic field. The atomic system, thus, is described by the density matrix $\rho'(t = \tau)$, which is obtained by means of equation (3). The density matrix $\rho(\tau)$, in the unrotated coordinate frame, is deduced from the relation :

$$\rho(\tau) = M(\beta)^* \cdot \rho'(\tau) \cdot M(\beta).$$

For the D_1 -line, the fluorescence signal does not depend on the coherences of the excited state [9], it is proportional to the sum of the sublevels populations of this state. As the laser light is linearly polarized, in the direction of the quantization axis, the fluorescence signal is proportional to :

$$S = 20\rho_{00}(\tau) + 15(\rho_{11}(\tau) + \rho_{-1-1}(\tau)). \quad (5)$$

Finally, one finds that :

$$\begin{aligned} S = & 30 \cos^2 \beta \cdot \sin^2 \beta \cdot \cos(\omega_0 \cdot \tau) \cdot \cos(\Delta\omega_0 \cdot \tau) \cdot \{ \cos^2(\Delta\omega_0 \cdot \tau) \cdot [6\Delta\rho_0 \cdot \sin^2 \beta + 2\Delta\rho_2 \cdot \sin^2 \beta - 8\Delta\rho_2] + \\ & + 6\Delta\rho_2 - 2\Delta\rho_2 \cdot \sin^2 \beta + \Delta\rho_0 - 6\Delta\rho_0 \cdot \sin^2 \beta \} - \frac{15}{2} \sin^4 \beta \cdot \cos(2\omega_0 \cdot \tau) \\ & \times \{ \cos(4\Delta\omega_0 \cdot \tau) \cdot [2\Delta\rho_2 - \Delta\rho_2 \cdot \sin^2 \beta - \Delta\rho_0 + 3\Delta\rho_0 \cdot \cos^2 \beta] \\ & + \Delta\rho_2 \cdot \sin^2 \beta - 3\Delta\rho_0 \cdot \cos^2 \beta \} + \text{constant term}. \end{aligned} \quad (6)$$

The calculation can be pursued in two extreme situations. For weak laser power, the modification of the populations of the ground-state Zeeman sublevels is deduced from the relative optical transition probabilities. It results in a population distribution such as :

$$\Delta\rho_0 = -\frac{1}{3} \Delta\rho_2.$$

This relation yields :

$$S = -\frac{15}{2} \sin^2 \beta \cdot \Delta \rho_2 \cdot \left\{ 4 \cos^2 \beta \cdot \cos(\omega_0 \cdot \tau) \cdot \cos(\Delta \omega_0 \cdot \tau) \cdot \left[8 \cos^2(\Delta \omega_0 \cdot \tau) - \frac{17}{3} \right] + \sin^2 \beta \cdot \cos(2 \omega_0 \cdot \tau) \cdot \left[\frac{4}{3} \cos(4 \Delta \omega_0 \cdot \tau) + 1 \right] \right\} + \text{constant term.} \quad (7)$$

For strong laser power, the ground sublevels are all depleted but the levels $F = 2, m_F = \pm 2$, therefore $\Delta \rho_0 = 0$. The calculation leads to nearly similar results. So, in the following, we adopt the expression of S given by the relation (7).

3.4 COMPARISON BETWEEN THEORETICAL AND EXPERIMENTAL RESULTS. — Figure 5 shows the fluorescence signal S plotted for different field values of β ($30^\circ, 60^\circ, 90^\circ$), versus the magnetic field. Large and periodic oscillations appear, modulated by nodes and anti-nodes pattern. Theoretical and experimental curves are in good agreement. It is remarkable that, for $\beta = 30^\circ$, the oscillations frequency is half the frequency of the curve plotted for $\beta = 90^\circ$; this corresponds to the fact that the $2 \omega_0$ -harmonic of S has a weak amplitude in the first case, whereas that of ω_0 -harmonic is zero in the other case. The case $\beta = 60^\circ$ shows an intermediate situation where oscillations at frequencies ω_0 and $2 \omega_0$ have comparable amplitudes. The nodes, visible on the experimental curves are reproduced by the calculation only if one considers the non linearity of the Zeeman effect. Therefore, the

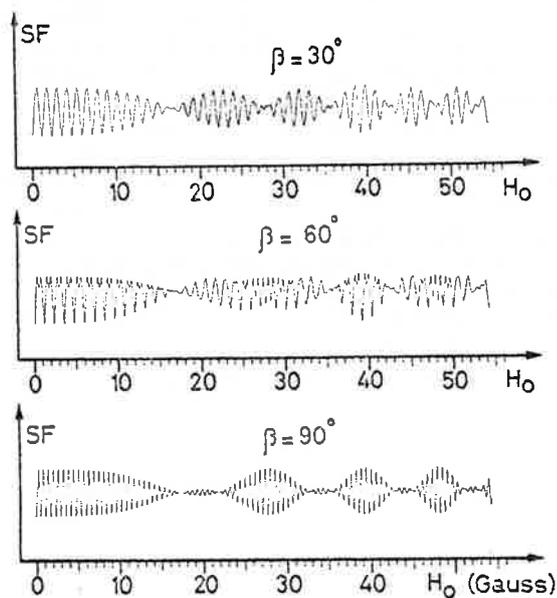


Fig. 5. — Theoretical fluorescence signal for the $F = 2 \rightarrow F' = 1$ hyperfine transition calculated from the formula (7) (see text). To get the best fit between these curves and the corresponding recorded ones of figure 3, two parameters have been adjusted : H_0/I , as explained in figure 3 and the flight time τ . The best fit is obtained for $H_0/I = 8.93$ G/A and $\tau = 1.2$ μ s.

position of the nodes may lead to a rough determination of the hyperfine structure while the frequency ω_0 depends on the nuclear spin.

The case of the hyperfine transition $F = 1 \rightarrow F' = 1$ has been treated, too. The expression of S , obtained for this transition, is less complicated and in good agreement with the experimental curves (see Fig. 4B). The case of a σ^\pm -excitation has been also considered, for $\beta = 90^\circ$, experimentally as well as theoretically. These signals may be explained, in another way, by some considerations on Zeeman coherences induced in the ground-state by the laser light. The ω_0 -harmonic corresponds to $|\Delta m_F| = +1$ coherences, while $|\Delta m_F| = +2$ corresponds to $2 \omega_0$ -harmonic. In the case of the D_1 -line hyperfine transitions, only the Zeeman coherences for which $|\Delta m_F| \leq 2$ are observable [9]. This explains that no higher order harmonics appear. When β is small, the coherences with $|\Delta m_F| = +1$ are preponderant. For $\beta = 90^\circ$, i.e. for σ -polarized light, the coherences which are induced are only those with $|\Delta m_F| = +2$.

The present experiment may be compared to an optical pumping experiment described by Schieder and Walther [9]. Their experiment has been performed on a thermal atomic beam ; therefore, the oscillations were smeared out due to the thermal velocity spread. In our experiment, as the atomic beam is quasi monokinetic, the signal modulation is observable in a very wide range of magnetic field amplitude.

4. r. f. magnetic resonance experiment.

A classical magnetic resonance experiment is now described. The principle of this experiment is well-known : at optical resonance with one of the hyperfine components of the Na-D lines, the laser light induces an optical pumping which changes the populations distribution between the magnetic sublevels (F, m_F) of the ground-state. When the r.f. magnetic field frequency is set to the frequency of an allowed magnetic transition between two adjacent Zeeman sublevels of the ground-state hyperfine level, the r.f. magnetic field tends to equalize the populations of the involved Zeeman sublevels, so that the fluorescence signal is modified.

The transition frequency between two adjacent Zeeman sublevels in a weak magnetic field H_0 is approximately given by :

$$\nu = \frac{2 \mu_B H_0}{(2I + 1) h}. \quad (8)$$

For a given r.f. frequency $\nu_{r.f.}$, the nuclear spin I can be deduced from the measurement of the magnetic field value H_0 which produces a modification of the detected signal of fluorescence.

The r.f. power is delivered by a tunable, commercial r.f. generator (Rohde and Schwartz SMS 0.4-1 040 MHz), followed by a linear wideband amplifier. The laser light is linearly polarized; the direction of the static magnetic field H_0 is set parallel to the light polarization, with the r.f. off and the laser frequency tuned to the hyperfine transition. The earth magnetic field is cancelled. To make sure that the recorded signals are only due to r.f. resonance, a square wave modulation is applied to the r.f. voltage output and the magnetic resonance signal is synchronously detected by a lock-in amplifier.

Figure 6 (left side) shows magnetic resonance signals recorded in the case where the laser frequency is locked, at exact resonance to the hyperfine transition :

$$3^2S_{1/2}, F = 1 \rightarrow 3^2P_{1/2}, F' = 1.$$

To obtain these curves, the r.f. frequency and power are maintained fixed whereas the d.c. current in the Helmholtz coils is swept until a resonance occurs. The population of the $F = 1, m_F = 0$ sublevel is then redistributed, giving an increase of the detected fluorescence signal. The curves recorded are found to be in good agreement with the Majorana formula [10], which gives the probability $P_{0,\pm 1}$ for a moment starting with a magnetic quantum number $m_F = 0$ to end with $m_F = \pm 1$ after the perturbation :

$$P_{0,\pm 1} = 4 \left(\frac{\omega_0 \cdot H_{r.f.}}{a \cdot H_0} \right)^2 \sin^2 \frac{a\tau'}{2} \times \left\{ 1 - \left(\frac{\omega_0 \cdot H_{r.f.}}{a \cdot H_0} \right)^2 \sin^2 \frac{a\tau'}{2} \right\} \quad (9)$$

with :

$$a = \left\{ (\omega_0 - \omega)^2 + \left(\frac{\omega_0 \cdot H_{r.f.}}{H_0} \right)^2 \right\}^{1/2}$$

where ω_0 is the Larmor pulsation of the ground state, $H_{r.f.}$ and ω the amplitude and angular frequency of the oscillating magnetic field and τ' the r.f. interaction time.

Theoretical line shapes are plotted on the right side of figure 6, as they may be calculated from relation (9).

For weak r.f. power (Figs. 6A), as well as for optimum r.f. power — i.e. power for which $P_{0,\pm 1} = 1$ at resonance — (Figs. 6B), the frequency full widths (FWHM) of experimental and theoretical curves are in good agreement, indicating that $\tau' = 0.5 \mu s$ is a correct value for the interaction time of the atoms with the oscillatory field.

When the r.f. power is increased, several oscillations appear (Figs. 6C and 6D), symmetrically with respect

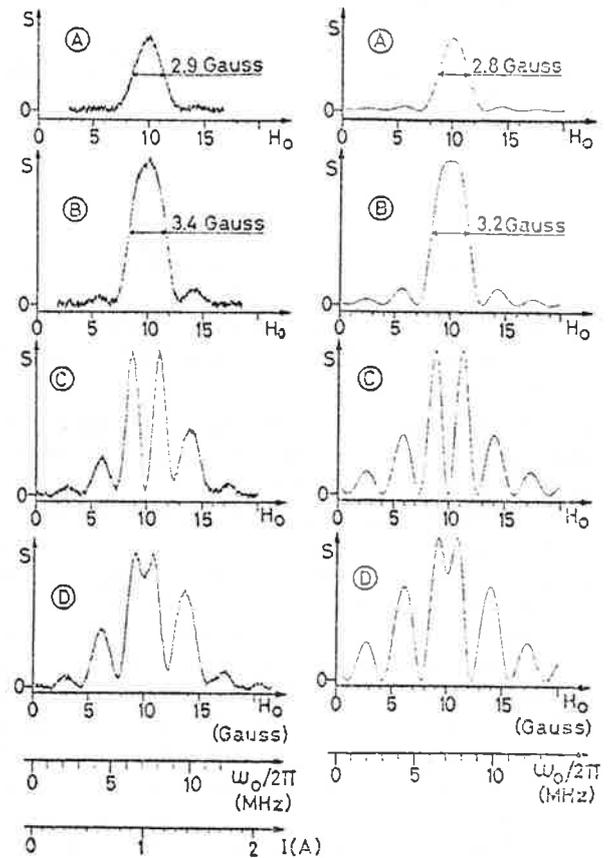


Fig. 6. — Recorded (left side) and calculated (right side) magnetic resonance signals. The laser is locked on the $F = 1 \rightarrow F' = 1$ hyperfine transition; the fixed r.f. frequency is $\omega/2\pi = 7$ MHz. The r.f. power is successively set to A : $P_0/4$, B : P_0 , C : $4P_0$, D : $7P_0$, where P_0 is the optimum power (see text). Theoretical curves are calculated according to formula (9) with $\tau' = 0.5 \mu s$ (solenoid length : 10 cm, atomic velocity : $v = 2 \times 10^5$ m/s). Frequency and magnetic field horizontal scales are related according to $\omega_0/2\pi H_0 = 0.7$ MHz/G since $I = \frac{3}{2}$ in the present case. Experimental curves were recorded as functions of the d.c. current intensity I in the Helmholtz coils. In the magnetic resonance experiment described in paragraph 4, the variable H_0 corresponds to the value of the static magnetic field at the centre of these coils where the atoms interact with the r.f. field. A direct measurement gave $H_0/I = 10$ G/A.

to the centre of the previous resonance. One can see that the experimental curves are well fitted by the theoretical ones. These oscillations are observable because of the homogeneity of the atoms velocities inside a fast atomic beam. In a thermal atomic beam, these oscillations are averaged over velocity distribution and quickly blurred [11]. Owing to the magnetic resonances full widths (~ 2 MHz) and the r.f. frequency (7 MHz), it is possible to determine from this experiment spin values as high as 7. For spins larger than 7, the r.f. frequency has just to be increased.

5. Conclusion.

The possibility of a direct nuclear spins measurement in collinear spectroscopy has been demonstrated. We are interested in collinear spectroscopy on long chains of unstable isotopes and we intend to use either of the two methods described above in the particular cases where the assignment of I would be doubtful. Diamagnetic atoms ($J = 0$ ground-state) require a particular attention. Since the magnetic moment is of the order of μ_n instead of μ_B , both methods require a strong static field but the classical r.f. magnetic resonance method needs also a high intensity r.f. field; the other one is therefore more advisable. The nuclear

spin I may often be determined in an easier way as shown by Neugart for radium isotopes [13]. However our method leads to a measurement of the g_I factor and therefore to the determination of the nuclear magnetic moment μ_I , I being known. In particular, this could be applied to the case of the radium element for which, till now, no nuclear magnetic moment is available. Otherwise, the method involving the use of a static magnetic field alone can be applied everywhere it is intended to detect phase changes in atoms eigenfunctions, occurring along the atomic beam. An example of possible applications would be the study of phase changing collisions.

References

- [1] JACQUINOT, P., KLAPISCH, R., *Rep. Prog. Phys.* **42** (1979) 773.
- [2] NEUGART, R., *10th Internat. Conf. on Electromagnetic Isotope Separators and Techniques related to their applications* (EMIS 10), Zinal, Switzerland, 1980.
- [3] BONN, J., KLEMP, W., NEUGART, R., *Phys. Lett. B* **82** (1979) 47.
- [4] MUELLER, A. C., BUCHINGER, F., KLEMP, W., OTTEN, E. W., NEUGART, R., EKSTRÖM, C., HEINEMEIER, J., *Nucl. Phys. A* **403** (1983) 234.
- [5] BENDALI, N., DUONG, H. T., SAINT-JALM, J. M., VIALLE, J. L., *J. Physique* **44** (1983) 1019.
- [6] BACAL, M., REICHEL, W., *Rev. Sci. Instrum.* **45** (1974) 769.
- [7] ANTON, K. R., KAUFMAN, S. L., KLEMP, W., MORUZZI, G., NEUGART, R., OTTEN, E. W., SHINZLER, B., *Phys. Rev. Lett.* **40** (1978) 642.
- [8] JUNCAR, P., PINARD, J., *Opt. Commun.* **14** (1975) 438.
- [9] SHIEDER, R., WALTHER, H., *Z. Phys.* **270** (1974) 55.
- [10] RAMSEY, N. F., *Molecular Beams* (Clarendon Press, Oxford) 1956.
- [11] TOREY, H. C., *Phys. Rev.* **59** (1941) 293.
- [12] NEUGART, R., *Proc. Int. Conf. on Lasers in Nuclear Physics*, Oak Ridge, 1982, Nuclear Science Research Conference Series, vol. 3 (Harwood Academic Publishers) 1982.
- [13] NEUGART, R., *6th Int. Conf. on Laser Spectroscopy*, Interlaken, Switzerland, 1983, to be published in *Laser Spectroscopy VI* (Springer-Verlag).
- [14] PANCHARATNAM, S., *Phys. Lett. A* **27** (1968) 509.
- [15] LALOË, F., LEDUC, M., MINGUZZI, P., *J. Physique* **30** (1969) 277 and 341.

Nom : BENDALI-CHALLANE

Prénom : Nedjma

Sujet : Spectroscopie laser à haute résolution sur jets d'atomes thermiques et rapides : application à l'étude d'isotopes peu abondants de Potassium et Francium. Contribution méthodologique à la spectroscopie colinéaire sur jets accélérés de Sodium.

RESUME

Cette thèse présente une étude expérimentale approfondie de la méthode de spectroscopie laser colinéaire sur un jet d'atomes neutres rapides. Différents modes de détection ont été étudiés, en termes de sensibilité particulièrement. D'autre part, des effets originaux liés à la géométrie de l'interaction et au caractère monocinétique du jet ont été observés et interprétés de façon quantitative.

Par ailleurs, des expériences plus classiques de spectroscopie laser à faisceaux croisés ont été réalisées sur des jets d'atomes thermiques de Potassium et de Francium. Elles ont abouti en particulier à la détermination de la transition optique correspondant à la raie D_1 de Francium, jamais observée auparavant.

MOTS CLES : Spectroscopie laser, Structure hyperfine, Déplacement isotopique, Pompage optique, Résonance magnétique, Spin et Moment magnétique nucléaire.

* *
*

