

THÈSE

PRÉSENTÉE À L'UNIVERSITÉ DE PARIS-SUD

CENTRE D'ORSAY

PAR

Josselyne CAHEN

LABORATOIRE AIMÉ COTTON

C. N. R. S.

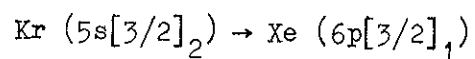
POUR OBTENIR

le titre de DOCTEUR de troisième cycle

SPECIALITÉ

Physique Atomique et Moléculaire

Mesure de la section efficace du transfert d'excitation :



SOUTENUE LE

DEVANT LA COMMISSION D'EXAMEN

M. P. JACQUINOT : Président

MM. J. BROCHARD
R. DAMASCHINI
M. CLERC } Examineurs

TABLE DES MATIERES

<u>INTRODUCTION</u>	1
<u>CHAPITRE I : LES TRANSFERTS D'EXCITATION</u>	3
I - Grandeurs caractéristiques d'un transfert d'excitation	6
1) Section efficace thermique	6
2) Profil Doppler caractéristique	8
a) Calcul du profil	8
b) Observation d'un profil Doppler caractéristique	14
II - Méthodes de mesure de la section efficace Q de transfert	16
1) Intensité de la fluorescence sensibilisée	16
a) Excitation optique directe	16
b) Excitation optique à partir d'un niveau excité	20
2) Mesure de la section efficace Q pour une excitation par décharge électrique	23
3) Mesure de la section efficace de quenching en post-décharge	26
<u>CHAPITRE II : TRANSFERT KRYPTON-XENON</u>	30
I - Les profils et leur interprétation	31
1) Enregistrement d'un profil	31
2) Interprétation des profils anormaux obtenus pour la raie à 3,36 m	32

3) Identification du niveau du Krypton responsable du transfert	35
II - Identification expérimentale du niveau du krypton donneur d'excitation	37
1) Principe de la méthode utilisée	37
2) Montage expérimental	38
3) Résultats et Conclusion	39
<u>CHAPITRE III</u> : MESURE DE LA SECTION EFFICACE Q DE TRANSFERT ..	42
I - Principe de mesure de population par absorption ...	44
1) Absorption monochromatique	44
a) Définitions de diverses grandeurs	44
b) Population du niveau $6p[3/2]_1$ du xénon due au transfert	45
2) Absorption totale sur une bande spectrale	47
a) Rappels	47
b) Population du niveau métastable $5s[3/2]_2$ du krypton	50
II - Mesures et Résultats	53
1) Choix des raies du krypton	53
2) Résultats	58
3) Section efficace Q de transfert	64
a) Mesure de Q à T=90 K	64
b) Mesure de Q à T=300 K	67
<u>CONCLUSION</u>	70
<u>REFERENCES</u>	72

INTRODUCTION

L'utilisation des lasers monomodes accordables en fréquence a profondément renouvelé la spectroscopie d'absorption. Certaines expériences nouvelles mettent à profit la puissance importante délivrée par les lasers à colorant. Dans d'autres expériences le principe reste classique, le laser monochromateur rendant simplement ces expériences plus aisées. C'est le cas de l'étude des profils des raies atomiques où seul un petit domaine spectral centré sur la raie est utile et où il n'est pas nécessaire de disposer d'une grande puissance. Ces conditions peuvent être réalisées pour les lasers à gaz et ce type d'études a été mis en oeuvre au laboratoire dès 1967 [1][2]. En effet un nombre important de transitions laser dans l'infra-rouge a été obtenu dans les gaz rares. La réalisation d'un laser à xénon monomode dont la variation en fréquence sur un petit domaine spectral (≈ 10 mK) est assurée par le déplacement d'un des miroirs de la cavité, a permis d'étudier l'élargissement et le déplacement par pression de la raie à $3,36 \mu\text{m}$ du xénon [3]. La même étude, mais en présence de krypton, fait apparaître des profils spectraux fortement perturbés. Pour interpréter ces profils, il est nécessaire de faire intervenir un transfert sur le niveau inférieur de la transition. En effet, à un transfert d'excitation non résonnant est

associé un profil Doppler quasi-rectangulaire dont la largeur est directement liée à la valeur du défaut d'énergie. Une étude systématique des profils anormaux a été entreprise [4]. A priori, plusieurs niveaux du krypton pouvaient être à l'origine de ces profils [5]. Une détermination plus élaborée de la forme des profils a permis, à partir d'hypothèses simples, d'identifier le niveau donneur d'excitation au métastable $5s[3/2]_2$ du krypton.

Au stade de l'étude, il restait à confirmer par une expérience directe l'origine du transfert et à le caractériser par la mesure de sa section efficace. La première expérience a été menée à bien par l'utilisation d'un laser à colorant modifiant la population du métastable [6]. La seconde expérience de plus longue durée nécessite des mesures de population de niveaux du krypton et du xénon. La description de ces expériences est l'objet de ce mémoire.

CHAPITRE I

LES TRANSFERTS D'EXCITATION

Parmi les collisions inélastiques pouvant se produire entre deux particules, nous allons considérer plus particulièrement les collisions de seconde espèce [7] qui donnent lieu à un transfert d'excitation entre deux atomes ; ce sont les chocs où l'un des deux atomes, initialement dans un état excité, cède son énergie d'excitation à l'autre atome qui, à la suite de ce choc, passe à son tour dans un état excité selon la relation suivante :



où ΔW représente la différence entre les énergies des états A^* et B^* . Ce défaut d'énergie ΔW se répartit sous forme d'énergie cinétique entre les deux atomes. La relation inverse de la relation (1) existe : l'énergie cinétique relative disponible dans le système du centre de masse peut être utilisée pour combler le défaut d'énergie ΔW entre les niveaux A^* et B^* et permettre l'excitation de l'atome A à partir d'un atome B^* . Nous pourrions généralement négliger ce processus inverse.

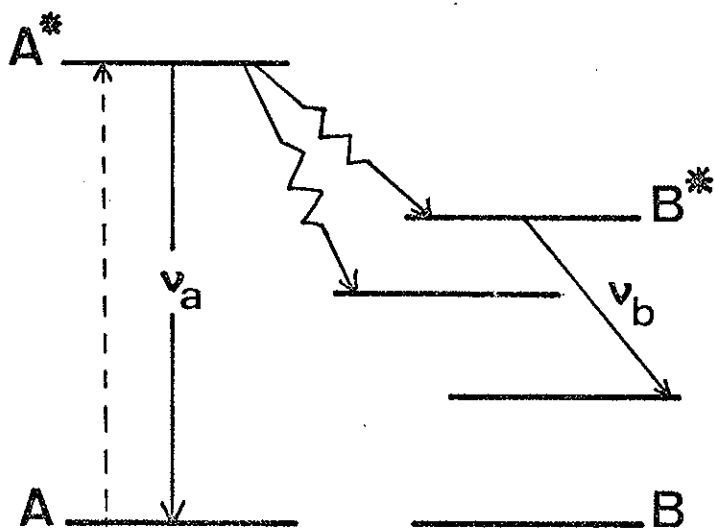
Il est traditionnellement admis qu'un petit défaut d'énergie ΔW augmente l'efficacité d'un transfert. De même Wigner a montré que la conservation du spin total résultant du système formé par les deux atomes est une condition favorable.

Ces transferts d'excitation entre les atomes peuvent

jouer un rôle important dans les décharges. Un exemple très connu est celui des transferts d'excitation entre les niveaux 2^1S et 2^3S de l'Hélium et les niveaux des configurations $2p^54s$ et $2p^55s$ du Néon, niveaux supérieurs des transitions laser à $0,63 \mu\text{m}$, $1,15 \mu\text{m}$ et $3,39 \mu\text{m}$ du néon (Javan [8]).

Mise à part la possibilité d'obtenir l'effet laser pour certaines transitions, il existe d'autres manifestations plus simples des transferts d'excitation entre deux éléments :

Considérons un mélange d'atomes A et B (voir figure). Par absorption d'une raie de résonance, des atomes A sont portés dans l'état A^* . Ils peuvent alors se désexciter soit par transition radiative, soit par transfert d'excitation avec des atomes B initialement dans l'état fondamental.



L'existence du transfert provoque une diminution de l'intensité de la raie de résonance due à la présence des atomes B. Ce phénomène porte le nom de "quenching" de la raie de résonance. Il constitue historiquement

la première mise en évidence expérimentale des transferts d'excitation faite par Wood en 1913 [9] (une diminution sensible de l'intensité de la radiation de résonance émise par les atomes de mercure lors de l'introduction d'une petite quantité d'air dans la lampe à mercure a été constatée). Ce nom de "quenching" est généralement associé au dépeuplement par transfert du niveau A^* . En effet les niveaux excités des atomes étant souvent proches les uns des autres, un même niveau A^* peut être "donneur d'excitation" pour plusieurs niveaux voisins de l'atome B .

On peut également étudier l'émission des atomes B^* excités par transfert. L'apparition, dans l'émission du mélange gazeux, de raies d'atomes excités par collision constitue aussi une mise en évidence directe de l'existence des transferts d'excitation. Ce phénomène porte le nom de "fluorescence sensibilisée" et la première expérience a été faite en 1922 par Cario et Franck sur le mélange Mercure-Thallium [10].

I. GRANDEURS CARACTERISTIQUES D'UN TRANSFERT D'EXCITATION.

1) Section efficace thermique.

En théorie classique des collisions on définit une section efficace de collision Q pour les N_c particules d'une cible fixe lorsque les N_p particules projectiles ont une vitesse donnée v par :

$$\frac{N \text{ chocs}}{N \text{ cible}} = N_p Q v dt .$$

Par analogie, dans le cas de choc avec transfert d'excitation, les particules projectiles seront les atomes A^* , les particules cibles les atomes B dans l'état fondamental. Si la distribution des vitesses relatives des atomes est isotrope dans l'espace, la probabilité pour que les atomes A et B , dont la vitesse relative est telle que son module soit compris entre v_r et $v_r + dv_r$, subissent un choc avec transfert d'excitation est :

$$\frac{dn}{N_{OB}} = N_{A^*} Q(v_r) v_r f(v_r) dv_r . dt$$

où : N_{A^*} est la densité d'atomes dans l'état A^*

N_{OB} est la densité d'atomes B dans l'état fondamental

dn le nombre de chocs par unité de volume donnant lieu à un transfert

et $f(v_r)$ la fonction de distribution des modules des vitesses relatives.

La section efficace est notée $Q(v_r)$ car elle peut a priori dépendre du module de la vitesse relative des atomes A et B .

Le nombre de chocs efficaces par unité de volume et par unité de temps pour tous les modules v_r des vitesses relatives possibles est :

$$\frac{dN}{dt} = N_{A^*} N_{OB} \int_0^{\infty} Q(v_r) \cdot v_r \cdot f(v_r) dv_r \quad . \quad (2)$$

Par définition des valeurs moyennes on a :

$$\int_0^{\infty} Q(v_r) \cdot v_r \cdot f(v_r) dv_r = \overline{Q(v_r) \cdot v_r} \quad ;$$

nous posons : $\overline{Q(v_r) \cdot v_r} = Q \overline{v_r}$

où Q est une section efficace effective de collision [11] et $\overline{v_r}$ est la vitesse relative moyenne des atomes A et B .

L'équation (2) s'écrit alors :

$$\frac{dN}{dt} = N_{A^*} N_{OB} Q \overline{v_r} \quad . \quad (3)$$

Dans le cas où la distribution des modules des vitesses relatives des atomes est une distribution de Maxwell-Boltzmann, la vitesse relative moyenne est donnée par :

$$\overline{v_r} = \sqrt{\frac{8kT}{\pi\mu}}$$

où μ est la masse réduite du couple d'atomes A et B .

La section efficace Q est alors appelée section efficace thermique (Q_T) car elle dépend de la température si $Q(v_r)$ dépend effectivement de v_r .

Le nombre de chocs efficaces par unité de volume et par unité de temps donnant lieu à un transfert correspond à la densité d'atomes B qui, par unité de temps, passent de l'état fondamental à l'état B* à la suite de collisions avec les atomes A* . On a donc :

$$\frac{dN}{dt} = \left(\frac{dN_{B^*}}{dt}\right)_{\text{transfert}} = -\left(\frac{dN_{A^*}}{dt}\right)_{\text{transfert}} .$$

La relation (3) peut s'écrire :

$$-\frac{dN_{A^*}}{dt} = N_{A^*} (N_{OB} Q \overline{v_r}) \quad (4)$$

et l'on peut définir une constante de temps τ du transfert associée au quenching du niveau A* par

$$\frac{1}{\tau} = N_{OB} Q \overline{v_r} . \quad (5)$$

Après avoir défini la section efficace Q du transfert et avant d'exposer quelques méthodes utilisées pour la mesurer, nous allons nous intéresser au défaut d'énergie ΔW entre les niveaux A* et B* . Nous avons dit que cette énergie ΔW se répartissait sous forme d'énergie cinétique entre les deux partenaires de la collision. Lorsque le défaut d'énergie ΔW est grand devant l'énergie thermique ($\Delta W > kT$), les atomes ayant subi un transfert ont des vitesses différentes des vitesses d'agitation thermique. Nous allons donc étudier maintenant les modifications apportées par le transfert à la distribution des vitesses.

2) Profil Doppler caractéristique.

a) Calcul du profil.

Comme dans le paragraphe précédent nous appelons v le module de la vitesse et v_x sa projection sur un axe ox .

Supposons d'abord que les atomes A et B ont des vitesses d'agitation thermique négligeables avant la collision et regardons ce qui se passe pour deux atomes seulement.

Ces deux atomes ont respectivement, après le choc, des vitesses v_A et v_B telles que la quantité de mouvement et l'énergie totale soient conservées. On a donc les relations suivantes :

$$m_A \vec{v}_A + m_B \vec{v}_B = \vec{0}$$

et
$$E_A + \frac{1}{2} m_A v_A^2 + E_{B^*} + \frac{1}{2} m_B v_B^2 = E_{A^*} + E_B$$

soit
$$\frac{1}{2} m_A v_A^2 + \frac{1}{2} m_B v_B^2 = \Delta W$$
 .

Le module de la vitesse acquise par l'atome B est donc :

$$v_B = \sqrt{\frac{2m_A}{m_B} \frac{\Delta W}{(m_A + m_B)}} .$$

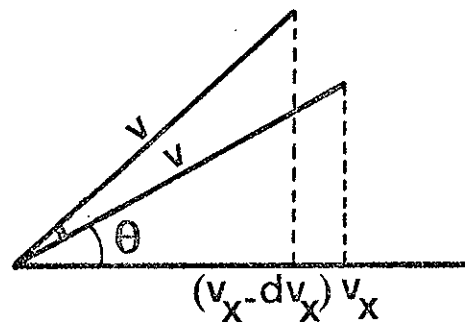
Il lui correspond un déplacement Doppler $\Delta\nu$ de la fréquence de la raie émise par l'atome B^* . Ce déplacement est donné par la relation :

$$\frac{\Delta\nu}{\nu} = \frac{v_B}{c} \cos \theta$$

où θ est l'angle formé par la direction du déplacement de l'atome avec celle du photon émis.

Ces relations sont valables pour tous les atomes B , et l'ensemble des vitesses dues au transfert se répartit selon une distribution isotrope dans l'espace ; un calcul simple donne la forme du profil associé à cette distribution.

Soit N_b le nombre d'atomes dans l'état B^* ayant acquis une vitesse v_x dans une direction x donnée et dN_{B^*} le nombre d'atomes B^* dont la composante de la vitesse dans cette même direction est comprise entre v_x et $v_x - dv_x$.



L'isotropie de l'espace impose : $dN_{B^*} = N_{B^*} \frac{d\Omega}{4\pi}$

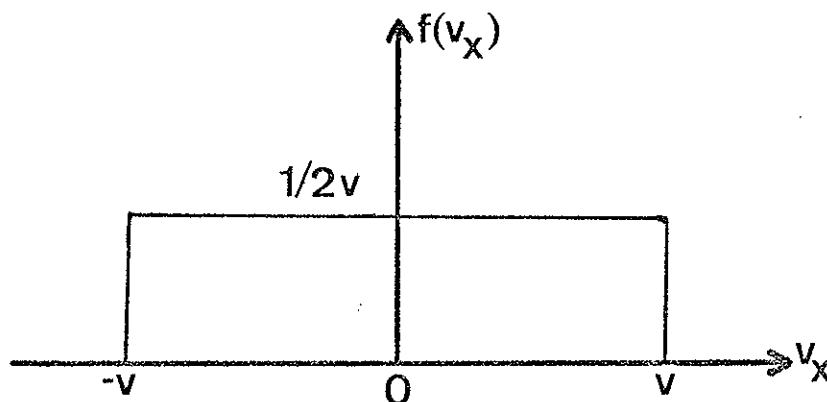
or $d\Omega = 2\pi \sin \theta \cdot d\theta$ et $\cos \theta = \frac{v_x}{v}$

donc $dN_{B^*} = \frac{1}{2} N_{B^*} \sin \theta \cdot d\theta = \frac{1}{2} N_{B^*} \frac{dv_x}{v}$.

Soit $f(v_x)$ la fonction de distribution des vitesses v_x des atomes B ($\int f(v_x) dv_x = 1$) on a :

$$dN_{B^*} = N_{B^*} f(v_x) dv_x \quad \text{et donc} \quad f(v_x) = \frac{1}{2v}.$$

La distribution des vitesses a l'allure ci-dessous :



Nous allons maintenant reprendre la même étude dans le cas où les vitesses thermiques des atomes A et B avant la collision ne sont plus négligeables.

Les deux atomes A et B ont une vitesse initiale relative de module v_r à laquelle est associée une énergie cinétique W_r dans le système du centre de masse.

Après le choc, la conservation de la quantité de mouvement et celle de l'énergie totale conduisent aux équations suivantes dans le système du centre de masse

$$m_A \vec{v}'_A + m_B \vec{v}'_B = \vec{0}$$

et
$$\frac{1}{2} m_A v'^2_A + \frac{1}{2} m_B v'^2_B = W_r + \Delta W .$$

L'atome B a donc après le choc une vitesse
$$v'_B = \sqrt{\frac{2m_A (\Delta W + W_r)}{m_B (m_A + m_B)}} .$$

Considérons un couple d'atomes A et B pris au hasard dans notre mélange gazeux : il est toujours possible de décomposer la vitesse totale de l'atome B en une vitesse relative définie dans le système du centre de masse et une vitesse d'entraînement. Pour l'ensemble des atomes B les distributions de ces 2 vitesses sont des distributions de Maxwell-Boltzmann indépendantes avant le choc. Le transfert d'excitation ne dépendant que des positions et des vitesses relatives des atomes A et B, seule la distribution des vitesses relatives sera perturbée par le transfert. Les deux distributions de vitesse après le choc restant indépendantes, la distribution finale sera obtenue en convoluant les distributions des vitesses d'entraînement et relatives [12] . Nous allons chercher la forme de la distribution des vitesses relatives après la collision.

Avant le choc, chaque atome B a une vitesse relative v_r dans le repère du centre de masse ; après le choc il a une vitesse v_{rf} telle que :

$$\frac{1}{2} m_B v_{rf}^2 = \frac{1}{2} m_B v_r^2 + \frac{m_A}{m_A + m_B} \Delta W$$

soit en introduisant la vitesse caractéristique $v_{ro} = \frac{2kT}{m}$ avec

$m = \frac{m_B^2}{\mu}$ si μ est la masse réduite (A, B) et en posant :

$$u = \frac{v_r}{v_{ro}} \quad , \quad u_f = \frac{v_{rf}}{v_{ro}} \quad \text{et} \quad \alpha^2 = \frac{\Delta W}{RT} \quad ;$$

la relation précédente s'écrit :

$$u_f^2 = u^2 + \alpha^2 \quad .$$

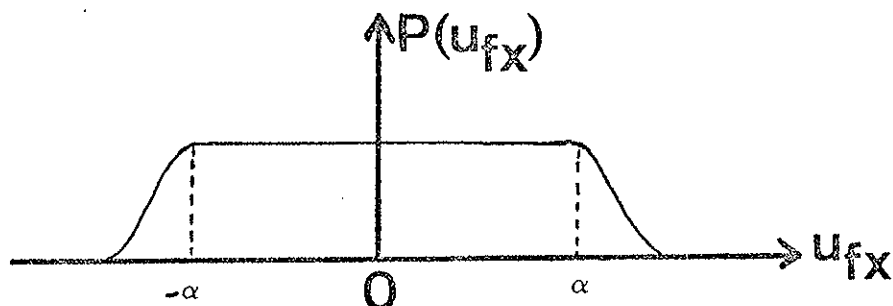
Cette relation définit le changement de variable qui lie les densités de probabilité $\mathcal{F}_i(u)$ et $\mathcal{F}(u_f)$ avant et après transfert. Compte tenu de l'isotropie, on obtient, pour une composante u_{fx} de u_f , la densité de probabilité :

$$f(u_{fx}) \propto \int_{|u_{fx}|}^{\infty} \frac{\mathcal{F}_i(u_f^2 - \alpha^2)}{u_f^2 - \alpha^2} du_f \quad \text{pour} \quad |u_{fx}| > \alpha$$

$$f(u_{fx}) = f(\alpha) \quad \text{pour} \quad |u_{fx}| < \alpha$$

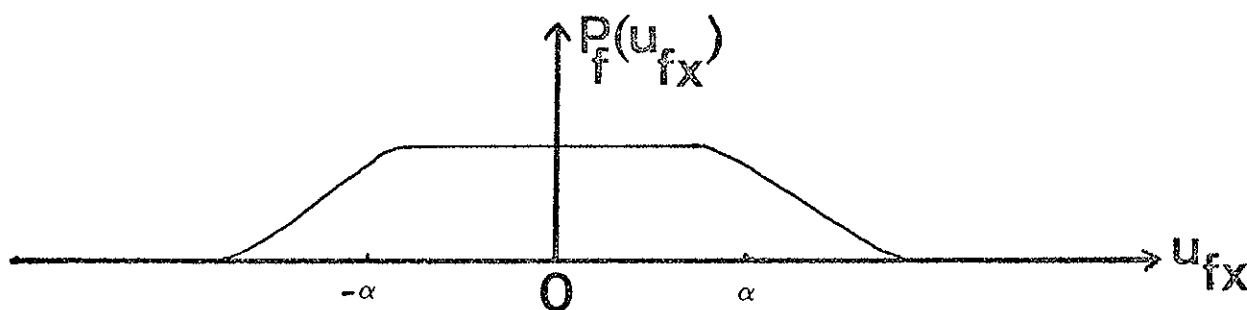
avec $\mathcal{F}_i(u) \propto Q(u) u^3 \exp[-u^2]$.

Pour α atteignant quelques unités au plus, la distribution des vitesses relatives dans une direction donnée a l'allure suivante :



La forme de la courbe dépend peu de la fonction $Q(u)$ et sa largeur à mi-hauteur est peu supérieure à 2α . Théoriquement la partie centrale est parfaitement plate sur une largeur égale à 2α .

Pour tenir compte des vitesses d'entraînement il faut convoluer la distribution précédente par une distribution gaussienne. On obtient alors la distribution finale des vitesses qui a l'allure ci-dessous.



Le nouveau profil est moins plat au centre et plus étalé dans les ailes mais sa largeur n'est pratiquement pas accrue. Elle est liée à la valeur du défaut d'énergie ΔW entre les niveaux A^* et B^* et peut être utilisée pour déterminer le niveau donneur d'excitation lors du transfert. Dans l'échelle des fréquences le segment $[-\alpha, +\alpha]$ a pour largeur :

$$\Delta\nu = \frac{2v_0}{c} \sqrt{\frac{2m_A}{m_B} \frac{\Delta W}{m_A + m_B}}$$

Ces profils Doppler quasi-rectangulaires peuvent être modifiés par les chocs élastiques entre les particules. Ces chocs tendent à thermaliser les vitesses des atomes, c'est-à-dire à les ramener à une distribution de vitesse de Maxwell-Boltzmann. Deux cas limites se présentent :

- Si la durée de vie des atomes dans l'état B^* est très grande devant le temps moyen entre deux collisions, l'équilibre thermodynamique est rétabli avant la désexcitation radiative des atomes, leur distribution de vitesse lors de l'émission est celle de Maxwell-Boltzmann sans trace de transfert.

- Si la durée de vie de ces atomes B^* est très petite devant le temps moyen entre 2 collisions, ils se désexcitent par transition radiative avant que leur distribution de vitesse n'ait été modifiée par les chocs thermalisants. Les profils d'émission de ces atomes sont alors des profils Doppler quasi-rectangulaires tels que ceux décrits plus haut. Dans les cas intermédiaires, les profils d'émission des atomes B^* sont plus ou moins modifiés par la thermalisation.

b) Observation d'un profil Doppler caractéristique.

Nous venons de voir qu'un défaut d'énergie ΔW , suffisamment grand devant kT , entre les niveaux A^* et B^* impliqués dans un transfert, donne lieu à une distribution de vitesses très différente de la distribution normale pour les atomes ayant subi le transfert. Si la durée de vie des atomes dans l'état B^* est suffisamment courte pour que la thermalisation intervienne peu, l'analyse des profils des raies émises ou absorbées à partir de ce niveau B^* peut permettre de mettre en évidence ce phénomène de transfert d'excitation. Lorsque la raie de fluorescence sensibilisée appartient au domaine visible, il est possible à l'aide d'un spectromètre Fabry-Perot de faire l'analyse du profil spectral de cette raie. Le profil n'est plus gaussien mais quasi-rectangulaire et plus ou moins affecté par la thermalisation ; sa largeur à mi-hauteur est

supérieure à la largeur Doppler normale. La comparaison entre les profils d'une même raie obtenus successivement en fluorescence sensibilisée et en fluorescence directe met en évidence l'existence d'un transfert d'excitation en faisant apparaître un élargissement ainsi qu'une déformation du profil.

Lors d'expériences sur le mélange Mercure - Cadmium, CHERON [13] a mis en évidence l'élargissement de la raie de fluorescence sensibilisée du Cadmium à $5\ 086\ \overset{0}{\text{Å}}$ mais si une déformation du profil de cette raie a bien été constatée, le profil quasi-rectangulaire n'a pu être enregistré directement. Les élargissements mesurés sont significatifs puisque la largeur de la raie de fluorescence sensibilisée est de 91 mK alors que celle de la raie de fluorescence directe est de 45 mK pour une pression de cadmium de quelques 10^{-3} Torr. Sosinskii et coll. [14] ont obtenu des résultats similaires.

Dans le cas d'une excitation dans une décharge, la population due aux chocs électroniques est généralement supérieure à la population due au transfert. Il est alors très difficile de mettre ce transfert en évidence sur le profil. Nous verrons toutefois un cas où l'on peut obtenir expérimentalement le profil dû au transfert lors d'une excitation par décharge électrique.

II. METHODES DE MESURE DE LA SECTION EFFICACE Q DE TRANSFERT.

La section efficace de transfert étant définie par :

$$\left(\frac{dN_{B^*}}{dt}\right)_{\text{transfert}} = N_{A^*} N_{OB} Q \overline{v_r} = - \left(\frac{dN_{A^*}}{dt}\right)_{\text{transfert}}$$

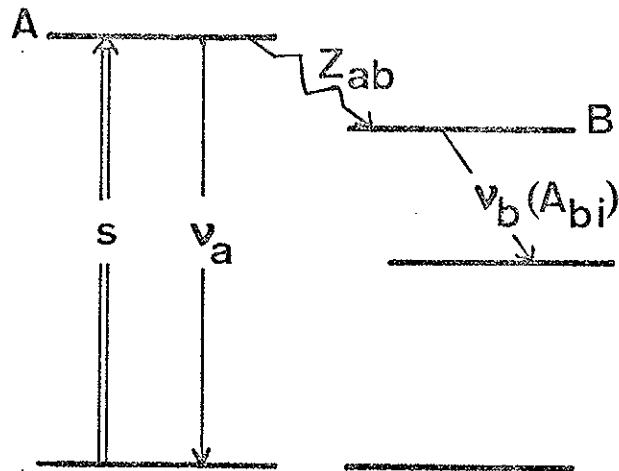
pour calculer Q , il faut donc mesurer $\frac{dN_{B^*}}{dt}$ et N_{A^*} . Connaissant la température du mélange N_{OB} est alors déterminée par une mesure de pression ($N_{OB} = P/kT$) et $\overline{v_r}$ est calculée en supposant que la distribution des vitesses relatives est une distribution de Maxwell-Boltzmann.

Nous allons donner deux exemples d'application du phénomène de fluorescence sensibilisée à la mesure de la section efficace selon que la raie de résonance utilisée pour exciter le niveau donneur appartient au domaine visible ou au domaine ultra-violet, puis nous indiquerons une méthode de mesure de la section efficace de transfert dans le cas d'une excitation par décharge et enfin un exemple de détermination de section efficace de quenching à partir de la mesure du temps τ associé au phénomène de transfert.

1) Intensité de la Fluorescence sensibilisée.

a) Excitation optique directe.

Considérons un transfert d'excitation entre un atome A^* et un atome B dans son état fondamental. Nous supposons, pour simplifier, que le niveau A^* ne transfère son excitation que sur un seul niveau B^* .



Le niveau A^* est peuplé sélectivement par absorption de sa raie de résonance ; il reçoit s atomes par seconde. Les équations de régime stationnaire pour les niveaux A^* et B^* sont :

$$\frac{dN_{A^*}}{dt} = s - \left(\frac{dN_{A^*}}{dt} \right)_{\text{transfert}} - \left(\frac{dN_{A^*}}{dt} \right)_{\text{émis.spont.}} = 0$$

et

$$\frac{dN_{B^*}}{dt} = \left(\frac{dN_{B^*}}{dt} \right)_{\text{transfert}} - \left(\frac{dN_{B^*}}{dt} \right)_{\text{émis.spont.}} = 0$$

c'est-à-dire :

$$\frac{dN_{A^*}}{dt} = s - \left(Z_{ab} + \frac{1}{\tau_{A^*}} \right) N_{A^*} = 0$$

et

$$\frac{dN_{B^*}}{dt} = N_{A^*} Z_{ab} - A_{bi} N_{B^*} = 0$$

où τ_{A^*} est la durée de vie effective des atomes A dans l'état A^* , A_{bi} la probabilité d'émission spontanée de la raie de fluorescence sensibilisée (qui sera remplacée par $\frac{1}{\tau_{B^*}}$ si il y a plusieurs raies de fluorescence sensibilisée), et Z_{ab} le nombre de transferts par atome excité A et par seconde.

On a :

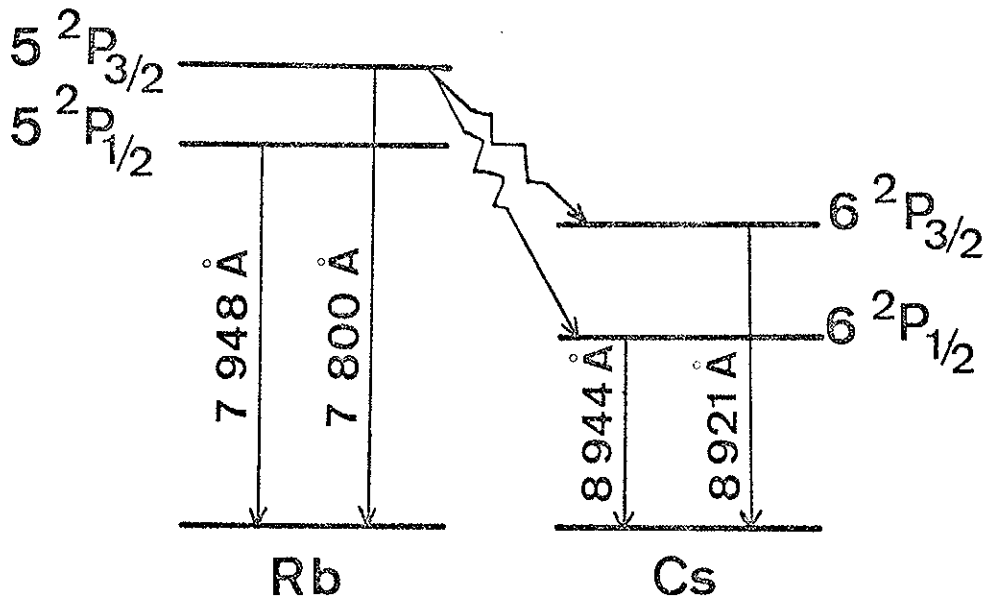
$$Z_{ab} = \left(\frac{dN_{B^*}}{dt} \right)_{\text{transfert}} / N_{A^*} = N_{OB} Q \overline{v}_r .$$

On définit η_{ab} comme étant le rapport de l'intensité de la raie de fluorescence émise par les atomes A^* et de l'intensité de la raie de fluorescence sensibilisée émise par les atomes B^* .

$$\eta_{ab} = \tau_{A^*} \cdot Z_{ab} = \tau_{A^*} N_{OB} Q \overline{v}_r .$$

La mesure de ce rapport η_{ab} permet donc de calculer la section efficace de transfert. La précision est toutefois limitée : par la nécessité de connaître les valeurs absolues des probabilités de transitions, par les mesures de population basées sur des mesures de pression, par l'emprisonnement de radiation et surtout par les mesures d'intensités.

Cette méthode basée directement sur le phénomène de fluorescence sensibilisée a été utilisée par Krause et ses collaborateurs [15,16]. Ils ont, par exemple, déterminé les sections efficaces de transfert d'excitation du doublet 5^2P du Rubidium vers le doublet 6^2P du Césium. Par absorption du doublet de résonance ($\lambda = 7800 \text{ \AA}$ et $\lambda = 7948 \text{ \AA}$) les atomes de rubidium du mélange inerte sont portés dans l'un des états $5^2P_{3/2}$ et $5^2P_{1/2}$. Les atomes de césium initialement dans leur état fondamental sont excités dans l'un des états $6^2P_{3/2}$ et $6^2P_{1/2}$ par collision avec les atomes de rubidium.



La mesure des divers rapports d'intensité η en utilisant l'une ou l'autre des deux raies de résonance du rubidium leur a permis de déterminer les diverses sections efficaces de transfert portées dans le tableau ci-dessous avec les écarts d'énergie entre les niveaux considérés.

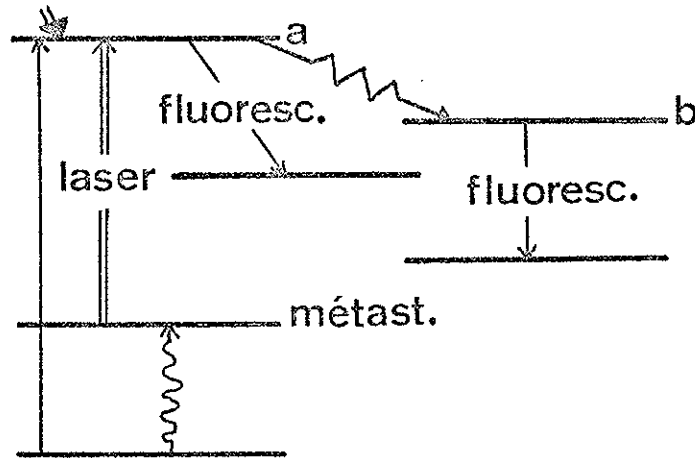
Transfert	$Q (\text{\AA}^2)$	$\Delta W / hc \text{ cm}^{-1}$
Rb $ 5^2P_{1/2} \rangle \rightarrow$ Cs $ 6^2P_{3/2} \rangle$	$1,5 \pm 0,4$	847
Rb $ 5^2P_{1/2} \rangle \rightarrow$ Cs $ 6^2P_{1/2} \rangle$	$0,5 \pm 0,1$	1401
Rb $ 5^2P_{3/2} \rangle \rightarrow$ Cs $ 6^2P_{3/2} \rangle$	$0,9 \pm 0,2$	1084
Rb $ 5^2P_{3/2} \rangle \rightarrow$ Cs $ 6^2P_{1/2} \rangle$	$0,3 \pm 0,1$	1638

Malgré les incertitudes provenant de la détermination des rapports d'intensité, ces valeurs des différentes sections efficaces de transfert vérifient la règle de Franck (1929) qui veut que Q augmente quand le défaut d'énergie entre les niveaux diminue.

b) Excitation optique à partir d'un niveau excité.

Lorsque la raie de résonance correspondant au niveau donneur se situe dans le domaine ultra-violet lointain, une excitation sélective de ce niveau par absorption de cette raie est très difficile à réaliser. On peut éviter cette difficulté et étendre les possibilités de la méthode en utilisant un niveau intermédiaire comme base de l'excitation sélective. Ce niveau intermédiaire doit être suffisamment peuplé pour que le transfert soit décelable ; le choix d'un niveau métastable ou fortement résonnant est donc tout particulièrement indiqué. Les atomes initialement dans l'état fondamental sont portés dans un état métastable (ou pseudo-métastable) par une excitation électronique puis dans l'état final d'excitation par absorption de la raie correspondante. Cette excitation sélective peut être réalisée à l'aide d'un laser accordable.

Considérons le schéma ci-dessous des niveaux mis en jeu dans l'expérience.



Le transfert étudié ayant lieu du niveau a vers le niveau b nous ne tiendrons pas compte du phénomène inverse puisque la méthode est basée sur une variation de l'excitation sélective du niveau donneur. Dans la décharge les atomes peuvent être portés dans l'état a directement ou par désexcitation à partir de niveaux supérieurs.

La méthode de mesure de section efficace que nous allons exposer a été utilisée par J. P. Grandin et coll. [18] pour l'étude des transferts néon-néon ; le fait que les niveaux a et b soient ceux d'un même gaz ne change rien au principe de la méthode.

Si N_a et N_b sont les densités de population des niveaux a et b respectivement, τ_a et τ_b leurs durées de vie et τ_{ab} le temps moyen entre deux collisions qui donnent lieu à un transfert de a vers b, en l'absence d'excitation laser l'équation de régime stationnaire du niveau b s'écrit :

$$\frac{dN_b}{dt} = \frac{-N_b}{\tau_b} + \frac{N_a}{\tau_{ab}} + R = 0$$

où R rassemble des phénomènes susceptibles de modifier la population du niveau b et qui ne sont pas liés à l'excitation optique par laser. En présence de cette excitation laser et à condition que sa durée soit suffisante pour permettre l'établissement d'un régime stationnaire pour le niveau b on aura :

$$\frac{dN'_b}{dt} = \frac{-N'_b}{\tau_b} + \frac{N'_a}{\tau_{ab}} + R = 0 .$$

soit, en posant $\Delta N = N' - N$

$$-\frac{\Delta N_b}{\tau_b} + \frac{\Delta N_a}{\tau_{ab}} = 0 \quad \text{c'est-à-dire} \quad \frac{\Delta N_a}{\Delta N_b} = \frac{\tau_{ab}}{\tau_b} \quad (6)$$

τ_{ab} est défini par la relation (I.5).

Pour atteindre le rapport $\Delta N_a / \Delta N_b$, on mesure les intensités d'une raie issue du niveau a et d'une raie issue de b avec et sans excitation laser. En tenant compte des égalités précédentes, on obtient :

$$\frac{\Delta I_a}{\Delta I_b} = \frac{\Delta N_a}{\Delta N_b} \frac{v_a A_a}{v_b A_b}$$

$$\frac{\Delta I_a}{\Delta I_b} = \frac{v_a A_a}{v_b A_b} \frac{kT}{\tau_b v_r} \times \frac{1}{Q_{ab}} \times \frac{1}{P} \quad (7)$$

Pour une pression p donnée on peut donc calculer la section efficace Q_{ab} à partir de la détermination du rapport $\frac{\Delta I_a}{\Delta I_b}$ si l'on connaît tous les facteurs intervenant dans l'expression (7) (autres que Q_{ab}). La courbe $\frac{\Delta I_a}{\Delta I_b} = f(1/p)$ doit être une droite si aucun phénomène annexe ne vient perturber l'influence du transfert. Par suite des transferts

inverses négligés ci-dessus, un terme indépendant de p s'ajoute au second membre de (7) mais la pente n'est pas modifiée. J. P. Grandin et coll. ont bien obtenu une droite dans le cas des transferts entre les niveaux $2p$ du néon ; mais pour éliminer les effets secondaires, il leur faut extrapoler à courant de décharge nul pour chaque valeur de p . Les valeurs des sections efficaces qu'ils ont obtenues sont présentées dans le tableau ci-dessous (Leurs principales causes d'incertitude sont liées à la détermination des probabilités de transition et à celle de la température).

Transfert	$\Delta W/hc \text{ cm}^{-1}$	$\lambda_a \text{ \AA}$	$\lambda_b \text{ \AA}$	$Q_{ab} \text{ \AA}^2$
$2p_3 \rightarrow 2p_4$	-59	6074	6096	$31,1 \pm 2$
$2p_4 \rightarrow 2p_3$	+59	6096	6074	$4,8 \pm 0,5$
$2p_5 \rightarrow 2p_4$	-86	5976	5945	$4,6 \pm 0,5$
$2p_4 \rightarrow 2p_5$	+86	6678	6717	$3,6 \pm 0,5$

2) Mesure de la section efficace Q pour une excitation par décharge électrique.

Les notations prises sont les mêmes que précédemment ; on appelle a le niveau donneur et b le niveau receveur, le niveau donneur d'excitation étant maintenant un niveau métastable.

La méthode décrite ici, mise en oeuvre par Ricard et Deschamps [19], repose essentiellement sur la mesure de concentrations de métastables en fonction du courant de décharge (Les concentrations de gaz A et B étant données). La mesure de ces concentrations de métastables est effectuée par des méthodes classiques d'absorption optique ; elles sont liées au courant de décharge I par la relation (8) basée sur des hypothèses simplificatrices. Le bilan création-destruction des métastables s'écrit :

$$K_1 I = N_a [(K_2 + K_3) + K_4 I] \quad (8)$$

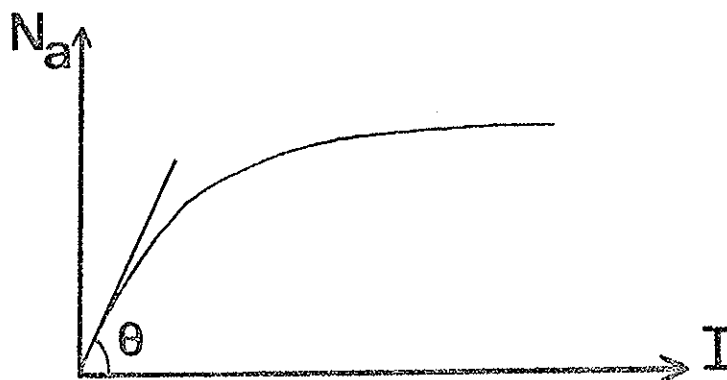
où K_1 caractérise l'excitation électronique,

K_2 est lié à la destruction des métastables sur les parois et est calculable,

K_3 caractérise le transfert ($K_3 = N_{oB} Q_{ab} \overline{v_r}$)

et K_4 permet de tenir compte des destructions des métastables par les électrons.

La relation (8) est bien vérifiée par l'expérience qui donne lieu, pour le transfert Argon-Azote, à la courbe ci-dessous :



La pente de la tangente à l'origine à la courbe expérimentale est d'après (8) :

$$\operatorname{tg} \theta = \frac{K_1}{K_2 + K_3}$$

K_1 est déterminé par l'intermédiaire d'expériences auxiliaires où sont notamment mesurées la température et la concentration électronique de la décharge. Connaissant $\operatorname{tg} \theta$ on en déduit K_3 et par conséquent Q_{ab} . Toutefois cette méthode est très indirecte et il faut s'attendre à obtenir des résultats fortement entachés d'incertitude.

Le tableau ci-dessous donne les résultats obtenus par Ricard et Deschamps pour le mélange Argon-Azote :

Niveaux d'Argon	$Q \text{ A}^2$
3P_2	$(2 \pm 0,6)$
3P_1	(2 ± 1)
3P_0	$(0,35 \pm 0,13)$
1P_1	$(1,2 \pm 0,6)$

3) Mesure de la section efficace de Quenching en post décharge.

Nous avons vu au paragraphe (I,1) que l'on peut définir une constante de temps τ associée au quenching d'un niveau A^* par :

$$\frac{1}{\tau} = N_{oB} Q \overline{v_r} .$$

La mesure de cette constante de temps permet donc de calculer la section efficace de quenching du niveau A^* .

On peut définir une durée de vie τ' du niveau A^* à partir de tous les phénomènes autres que les transferts. Si τ' est très grand par rapport à τ , la décroissance dans le temps de la concentration d'atomes A^* est due au transfert d'excitation. On peut donc obtenir τ en mesurant par absorption $N_{A^*}(t)$ en post-décharge. Les mesures ne peuvent être exploitées que quand les phénomènes liés à la décharge (excitation électronique, recombinaison, etc...) ont pratiquement cessé. De façon générale N_{A^*} est alors très faible. Si la durée de vie des niveaux receveurs est très faible, la décroissance des atomes B^* se fait avec la même constante de temps τ que la variation de la concentration d'atomes donneurs. La mesure de τ peut alors être faite en étudiant l'évolution des populations N_{A^*} ou N_{B^*} soit par absorption, soit par émission. Botchkova et Kouznetsova [20] ont déterminé ainsi les valeurs des sections efficaces de quenching des niveaux métastables 3P_2 et 3P_0 du krypton par les atomes de xénon. Les premiers niveaux excités du krypton et du xénon sont représentés sur la Figure 1. Dans la post-luminescence d'une décharge à courant constant, la concentration d'atomes métastables de krypton est mesurée par une méthode d'absorption

Kr

Xe

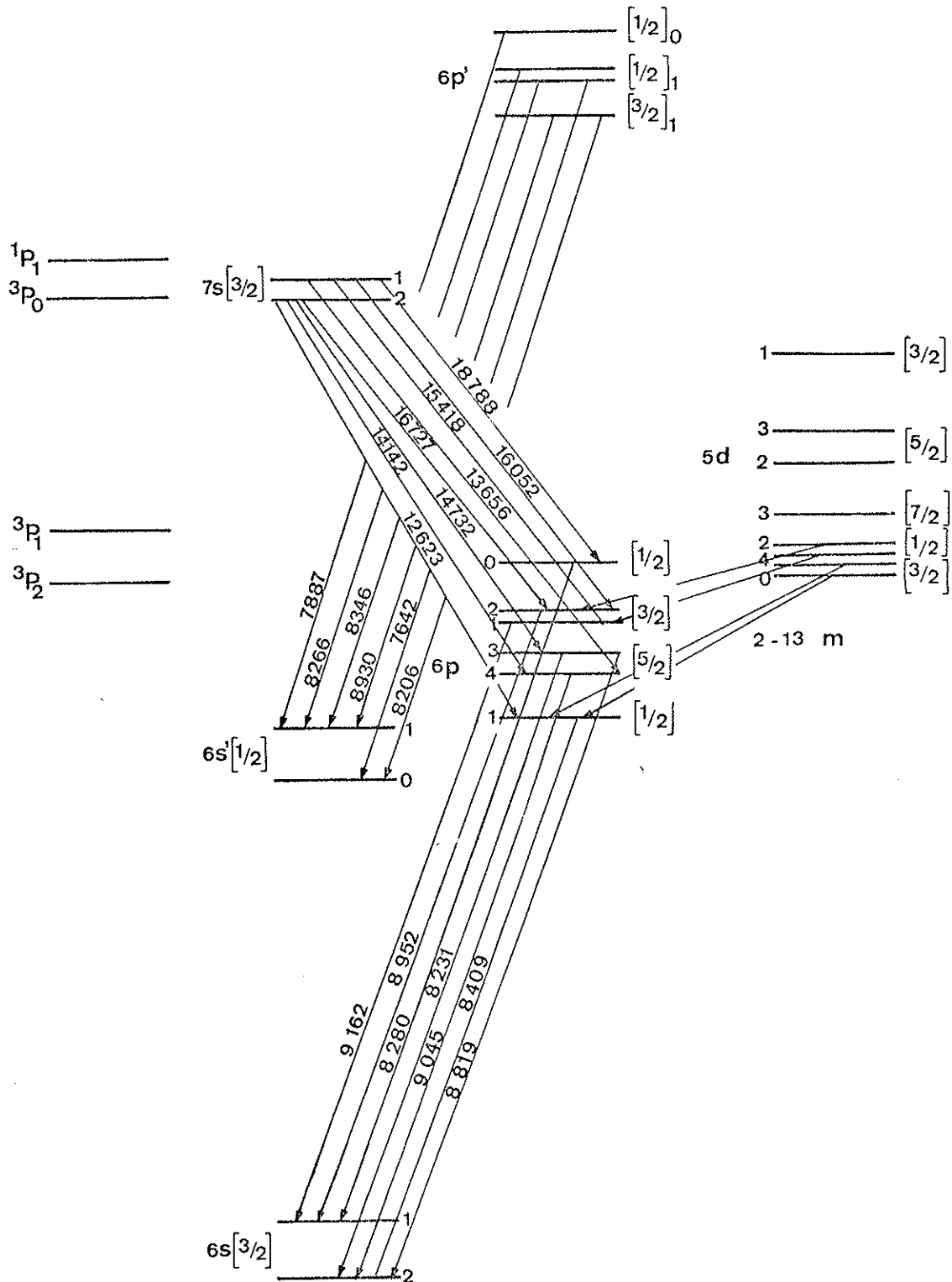


Figure 1

Schéma simplifié des premiers niveaux excités

du Krypton et du Xénon

classique. La variation dans le temps de l'intensité de fluorescence des raies du xénon (Figure 3) est en accord avec la variation de population des niveaux donneurs de krypton (Figure 2). En négligeant le peuplement des niveaux de la configuration $6p$ du xénon dû aux transitions issues des niveaux $7s$ et $5d$ ($13000 - 20000 \text{ \AA}$), Botchkova et Kouznetsova ont obtenu les valeurs suivantes pour les sections efficaces de quenching des niveaux 3P_2 et 3P_0 du krypton :

- pour le niveau 3P_2 : $Q = (1,0 \pm 0,3) 10^{-14} \text{ cm}^2$
- pour le niveau 3P_0 : $Q = (1,6 \pm 0,5) 10^{-14} \text{ cm}^2$.

Ces résultats ont été obtenus à $T = 500^\circ\text{K}$ pour des pressions du mélange xénon-krypton allant de 0,15 à 5 mm de mercure et des taux de krypton variant entre 0,1 et 20% .

En considérant le schéma de niveaux représenté sur la Figure 1, on voit que l'hypothèse d'un transfert d'excitation entre le niveau résonnant 1P_1 du krypton et le niveau $7s[3/2]_1$ du xénon peut être retenue vu le faible défaut d'énergie ($\frac{\Delta W}{hc} = 407 \text{ cm}^{-1}$) entre ces niveaux. Toutefois, pour mesurer le temps τ associé au transfert en utilisant la méthode décrite précédemment, la durée de vie du niveau $5s'[1/2]_1$ du krypton doit être supérieure à ce temps τ et celle du niveau $7s[3/2]_1$ du xénon doit lui être inférieure. Les durées de vie naturelles de ces deux niveaux sont connues grâce aux calculs de M. Aymar [21] :

$$\tau_{{}^1P_1} = 3,5 \cdot 10^{-9} \text{ s} \quad \text{et} \quad \tau_{7s[3/2]_1} = 10^{-8} \text{ s} .$$

L'ordre de grandeur du temps τ que l'on cherche à mesurer peut être obtenu en évaluant les différentes grandeurs qui interviennent dans sa

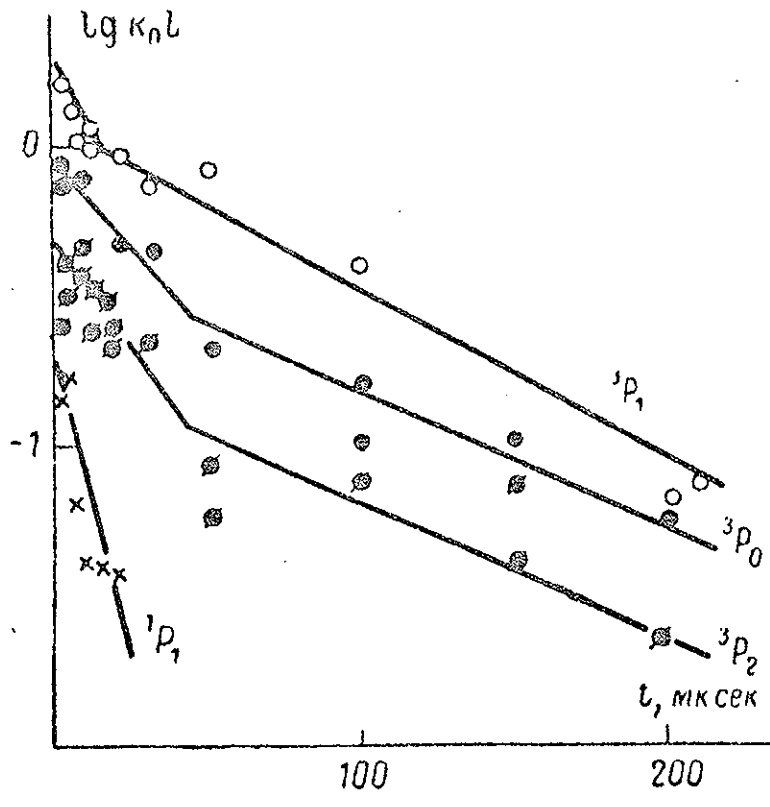


Figure 2

Décroissance avec le temps de la population des niveaux du Krypton

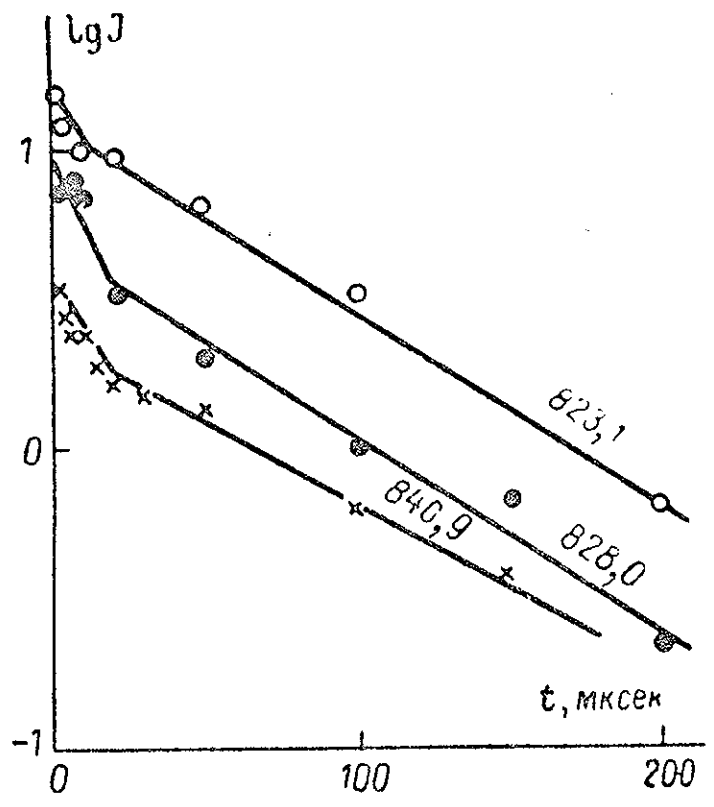


Figure 3

Décroissance avec le temps de l'intensité de fluorescence des raies du Xénon

définition. Pour une section efficace de quenching égale à 10^{-15} cm^2 pour une pression de xénon de 50 mT à 300°K, le temps τ est de 20 μs . Le niveau du krypton considéré est l'un des premiers niveaux résonnants, sa durée de vie radiative est courte ($3,5 \cdot 10^{-9} \text{ s}$), sa durée de vie effective est augmentée par le phénomène d'emprisonnement de la radiation de résonance. L'importance de cet emprisonnement de radiation a été calculé dans les cas simples de profils de raie purement Doppler et purement Lorentzien par Holstein [22]. Nous avons appliqué ses calculs en supposant que le profil de la raie de résonance considérée est purement Doppler ce qui se justifie par le fait qu'à 300°K la largeur Doppler est 30 fois plus grande que la largeur homogène (respectivement 117 mK et 4 mK pour une pression de krypton de 1 Torr). Ce calcul nous a conduit à une durée de vie de 350 μs pour le niveau $5s'[1/2]_1$. Les conditions restrictives concernant les durée de vie des niveaux impliqués dans le transfert paraissant être remplies, la mesure de τ sur la fluorescence en post décharge d'une raie du xénon doit être possible.

Le choix des raies du xénon que nous utilisons pour mesurer τ est basé sur la valeur de leur probabilité de transition A calculée par M. Aymar [21]. Ces valeurs ainsi que les longueurs d'onde des transitions correspondantes sont données dans le Tableau 1. La raie de résonance correspondant au niveau $7s[3/2]_1$, se situant dans le domaine ultraviolet ($\lambda = 1170 \text{ \AA}$), nous avons sélectionné les raies suivantes :

$$\begin{array}{lll} \lambda = 1,542 \mu\text{m} & (7s[3/2]_1 - 6p[3/2]_1) & A = 5,9 \cdot 10^6 \text{ s}^{-1} \\ \lambda = 1,366 \mu\text{m} & (7s[3/2]_1 - 6p[5/2]_2) & A = 8,5 \cdot 10^6 \text{ s}^{-1} \end{array} .$$

Nous n'avons pas mené ce travail à son terme car des essais suffisamment poussés ont montré que les raies à 1,542 μm et 1,366 μm sont émises avec une intensité trop faible compte tenu des performances des récepteurs rapides qui conviennent pour cette région spectrale.

Niveau Inférieur	λ (μm)	A_{ij} (s^{-1})
$6p[1/2]_0$	1,879	$1,60 \cdot 10^6$
$6p[3/2]_2$	1,606	$3,28 \cdot 10^6$
$6p[3/2]_1$	1,542	$5,93 \cdot 10^6$
$6p[5/2]_2$	1,366	$8,48 \cdot 10^6$
$6p[1/2]_1$	1,127	$0,57 \cdot 10^6$
$5p^6 1s_0$	0,117	$150 \cdot 10^6$

Tableau 1

Les probabilités de transition pour les raies issues du niveau $7s[3/2]_1$ vers les niveaux de la configuration $6p$ ont été calculées par M. Aymar. La probabilité de transition de ce niveau vers le niveau fondamental correspond à des résultats expérimentaux.

CHAPITRE II

TRANSFERT XENON - KRYPTON

Lors de l'étude de l'élargissement par pression de la raie à $3,36 \mu\text{m}$ ($6p[3/2]_1 - 5d[5/2]_2$) du Xénon en présence de gaz étrangers, R. Vetter et D. Reymann [23] ont obtenu des profils ne ressemblant plus à des profils de Voigt lorsque le gaz étranger était le Krypton. La présence de quatre niveaux du Krypton (deux métastables et deux résonnants) au voisinage des niveaux correspondant à la transition à $3,36 \mu\text{m}$ du Xénon fit supposer l'existence de transfert d'excitation entre le Krypton et le Xénon. Toutefois l'identification du niveau du Krypton responsable du transfert n'est pas immédiate ; de nombreuses expériences dans des conditions expérimentales variées ont été nécessaires avant que le niveau donneur d'excitation ne soit identifié avec certitude.

Nous allons dans ce chapitre rappeler une partie des résultats et des conclusions obtenus par M. Hugon lors de sa Thèse de 3ème Cycle [4]. Nous exposerons ensuite comment nous avons obtenu une détermination expérimentale directe du niveau du Krypton donneur d'excitation dans le transfert.

I. LES PROFILS ET LEUR INTERPRETATION.

1) Enregistrement d'un profil.

Le montage expérimental utilisé (représenté sur les Figures 1 et 2) ayant déjà été exposé [3][4] , nous n'en donnerons qu'une description sommaire. Sur le faisceau issu du laser source, dont le tube contient du Xénon et une forte pression d'Hélium (en vue d'obtenir un élargissement par pression des profils des raies), sont prélevés deux faisceaux de contrôle.

L'un est utilisé pour obtenir un étalonnage en fréquence à partir des franges d'un étalon de Fabry-Pérot sphérique confocal. L'épaisseur du Fabry-Pérot est de 90 cm ce qui donne un interfrange de 2,78 mK. Le second faisceau sert à l'asservissement en intensité du laser. Cette intensité est maintenue à une valeur constante sur un domaine spectral qui peut atteindre 10 mK dans le cas de la raie à 3,36 μm .

Le faisceau, d'intensité $I_0(\nu)$, utilisé pour la mesure traverse le tube à décharge excité par un courant modulé en créneaux à une fréquence de 250 Hz (modulation commandée par un chopper) . La détection du faisceau après la traversée du tube est assurée par une cellule photovoltaïque Sb-In refroidie à l'azote liquide, qui est reliée à un enregistreur à quatre voies par l'intermédiaire d'un système à détection synchrone. La fraction amplifiée ou absorbée du signal est la seule à être détectée car l'émission propre du tube est négligeable.

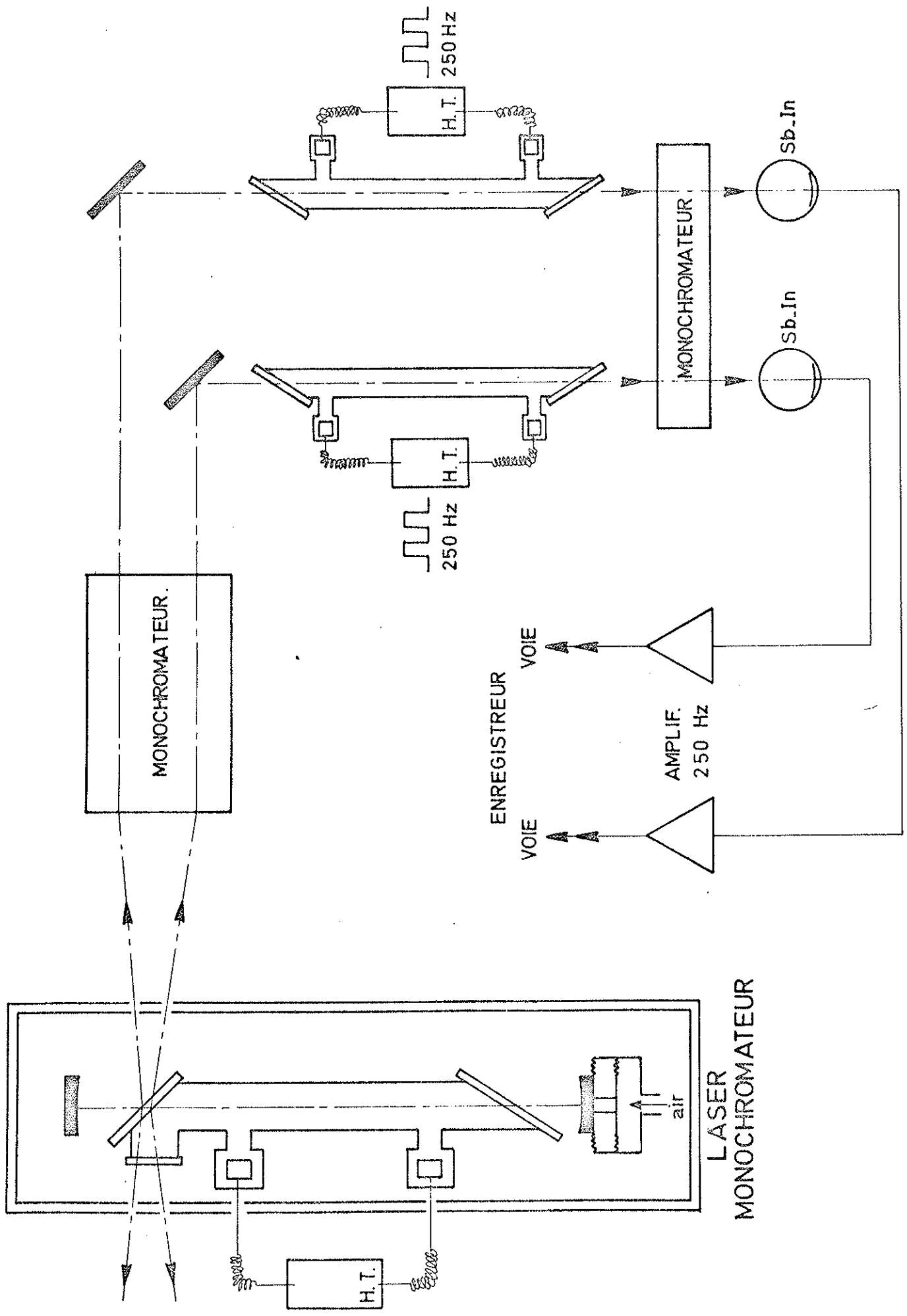


Figure 1 : Faisceau de mesure.

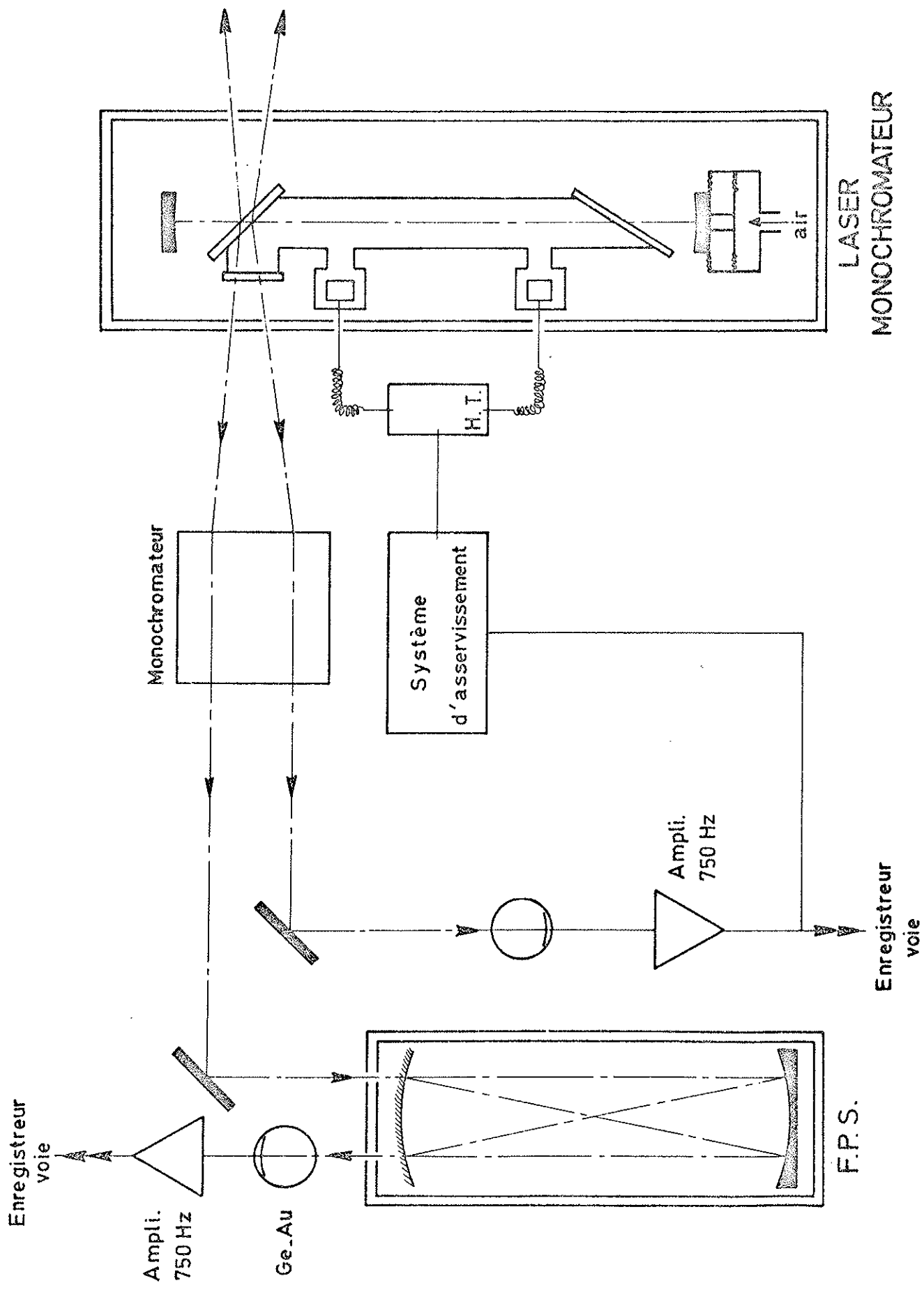


Figure 2 : Faisceaux de référence.

Pour un mélange Xénon-Krypton donné contenu dans le tube à décharge, nous enregistrons le profil d'absorption $\Delta I(\nu)$ de la raie à $3,36 \mu\text{m}$ avec un courant i de décharge et à une température T donnée, puis nous mesurons $I_0(\nu)$ en supprimant l'excitation du tube à décharge et en modulant directement à l'aide du chopper. Ces deux mesures de $\Delta I(\nu)$ et de $I_0(\nu)$ étant faites nous pouvons en déduire la valeur du coefficient d'absorption $k(\nu)$ en chaque point du profil puisque $k(\nu)$ est donné par :

$$k(\nu) = \frac{1}{\ell} \text{Log} \left\{ 1 + \frac{\Delta I(\nu)}{I_0(\nu)} \right\}$$

où ℓ est la longueur de la décharge.

En général le faisceau laser est faiblement absorbé, nous obtenons donc directement $k(\nu)$ sur l'enregistrement $\left(k(\nu) \approx \frac{1}{\ell} \frac{\Delta I(\nu)}{I_0(\nu)} \right)$.

2) Interprétation des profils anormaux obtenus pour la raie à $3,36 \mu\text{m}$.

Considérons les deux niveaux de la transition à $3,36 \mu\text{m}$ du xénon ; soient s le niveau supérieur et i le niveau inférieur. Il est possible de définir pour chacun de ces deux niveaux, un coefficient k qui caractérise globalement soit l'émission induite (pour le niveau s), soit l'absorption (pour le niveau i). Ces coefficients k sont proportionnels à la population du niveau considéré. Pour une fréquence ν donnée on définit un coefficient monochromatique $k(\nu)$ pour chacun des deux niveaux par :

$$k_{i,s}(\nu) = k_{i,s} P_{i,s}(\nu)$$

où $P_i(\nu)$ est le profil normalisé associé à la distribution de vitesse des atomes dans le niveau inférieur et $P_s(\nu)$ celui du niveau supérieur.

Pour la transition considérée, le coefficient d'absorption monochromatique $k(\nu)$ est simplement donné par :

$$k(\nu) = k_i(\nu) - k_s(\nu) = k_i P_i(\nu) - k_s P_s(\nu)$$

Soit, en tenant compte de la proportionnalité entre les coefficients k et les populations N des niveaux pour lesquels ils sont définis :

$$k(\nu) \propto \{n_i P_i(\nu) - n_s P_s(\nu)\} \quad (1)$$

avec : $n = \frac{N}{g}$ où g est le poids statistique du niveau considéré.

Nous nous plaçons dans le cas où les profils spectraux sont uniquement Doppler (élargissement homogène négligeable). En présence d'un transfert d'excitation, à la population "normale" du niveau, dont la répartition des vitesses est du type Maxwell-Boltzmann à la température d'équilibre, s'ajoute une population "anormale" dont la répartition des vitesses est du type de celle calculée au chapitre précédent (I,2). Supposons que le transfert d'excitation affecte le niveau inférieur de la transition considérée, le premier terme de l'expression de $k(\nu)$ s'écrit :

$$n_i P_i(\nu) = n_i^t R_i^t(\nu) + n_i^n P_i^n(\nu)$$

où n_i^t est la population supplémentaire du niveau due au transfert, $R_i^t(\nu)$ le profil Doppler quasi-rectangulaire associé au transfert, n_i^n la population normale du niveau inférieur et $P_i^n(\nu)$ le profil qui lui est associé.

Si nous représentons les deux profils Doppler $P_i^n(\nu)$ et $P_s(\nu)$ par une fonction de Gauss $G(\nu)$, l'expression (1) s'écrit :

$$k(\nu) \propto \left\{ n_i^t R_i^t(\nu) + (n_i^n - n_s) G(\nu) \right\} \quad (2)$$

Lorsque l'on parvient à réaliser l'égalisation des populations normales des niveaux supérieur et inférieur ($n_i^n - n_s = 0$), le profil enregistré sera le profil associé à la distribution anormale des vitesses ; il est représenté sur la Figure 3.

Lorsque la différence des populations normales est de l'ordre de grandeur de la population transférée ($n_i^n - n_s \neq n_i^t$), le profil enregistré est la superposition d'une gaussienne et d'un profil quasi rectangulaire (Figure 4). L'analyse de ce type de profils permet d'effectuer la séparation de la gaussienne et du "plateau" [4] (Figure 5) (cf. Chapitre III, § 1.1).

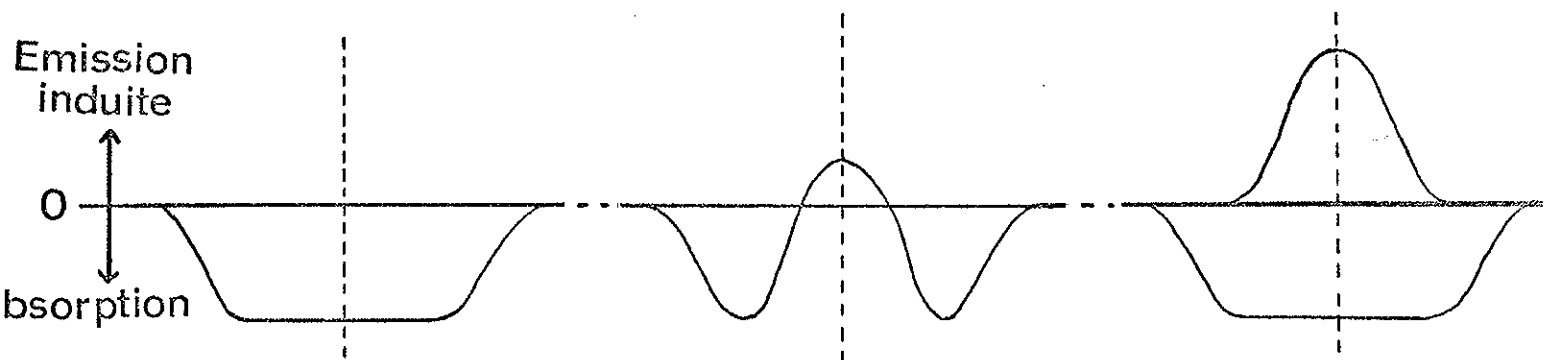


Figure 3

Figure 4

Figure 5

Des profils semblables à ceux des Figures 3 et 4 ont été obtenus pour la raie à 3,36 μm du xénon en présence de krypton dans différentes conditions de pression et de courant de décharge et de température.

L'interprétation de ces profils anormaux en termes de transfert paraît donc devoir être retenue. De plus, l'allure des profils enregistrés (Figure 6) indique que le transfert affecte le niveau inférieur de la raie à 3,36 μm , c'est-à-dire le niveau $6p[3/2]_1$ du xénon.

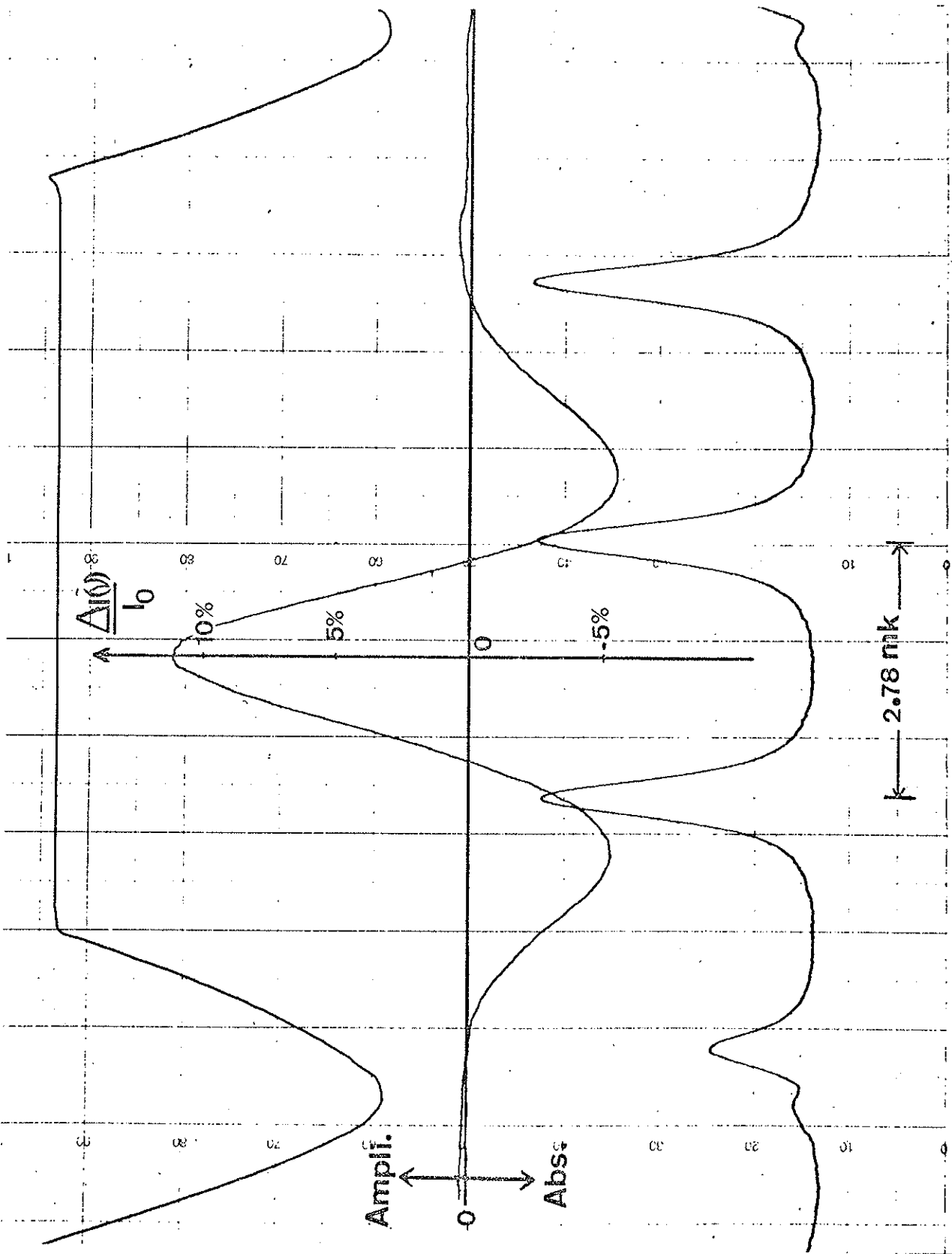


Figure 6

3) Identification du niveau du krypton responsable du transfert :

La Figure 7 représente une partie du diagramme d'énergie du xénon et du krypton. On peut s'attendre à trouver le niveau du krypton responsable du transfert parmi les niveaux de la configuration $4p^5 5s$ qui sont les premiers niveaux excités du krypton : ils sont fortement peuplés et proches des niveaux du xénon qui nous intéressent. Nous n'allons pas reprendre en détail les différentes possibilités mais simplement indiquer les deux hypothèses qui ont été finalement retenues.

La première est celle d'un transfert direct à partir du premier niveau métastable $4p^5 5s[3/2]_2$ du krypton. La probabilité de ce transfert paraît être faible et cela pour deux raisons : tout d'abord le grand défaut d'énergie entre ce niveau du krypton et le niveau $5p^5 6p[3/2]_1$ du xénon ($\frac{\Delta W}{hc} = 1016 \text{ cm}^{-1}$) entraîne, a priori, une faible valeur de la section efficace. De plus, de nombreux niveaux du xénon sont proches du métastable. Les transferts résonnants ou quasi-résonnants avec les niveaux de la configuration $5p^5 5d$ du xénon et en particulier le transfert avec le niveau $5p^5 5d[1/2]_1$ ($\frac{\Delta W}{hc} = -15 \text{ cm}^{-1}$), conduisent à un fort dépeuplement de ce niveau ainsi que le confirme la grande valeur obtenue par Botchkova et Kouznetsova pour la section efficace de quenching [20].

La deuxième hypothèse retenue est celle d'un transfert d'excitation du niveau $4p^5 5s'[1/2]_1$ du krypton vers le niveau $5p^5 7s[3/2]_1$ du xénon ($\frac{\Delta W}{hc} = 407 \text{ cm}^{-1}$), le niveau $5p^5 6p[3/2]_1$ du xénon étant affecté par ce transfert par l'intermédiaire d'une transition radiative ($6p[3/2]_1 - 7s[3/2]_1$) à $1,54 \mu\text{m}$ pour laquelle la probabilité d'émission

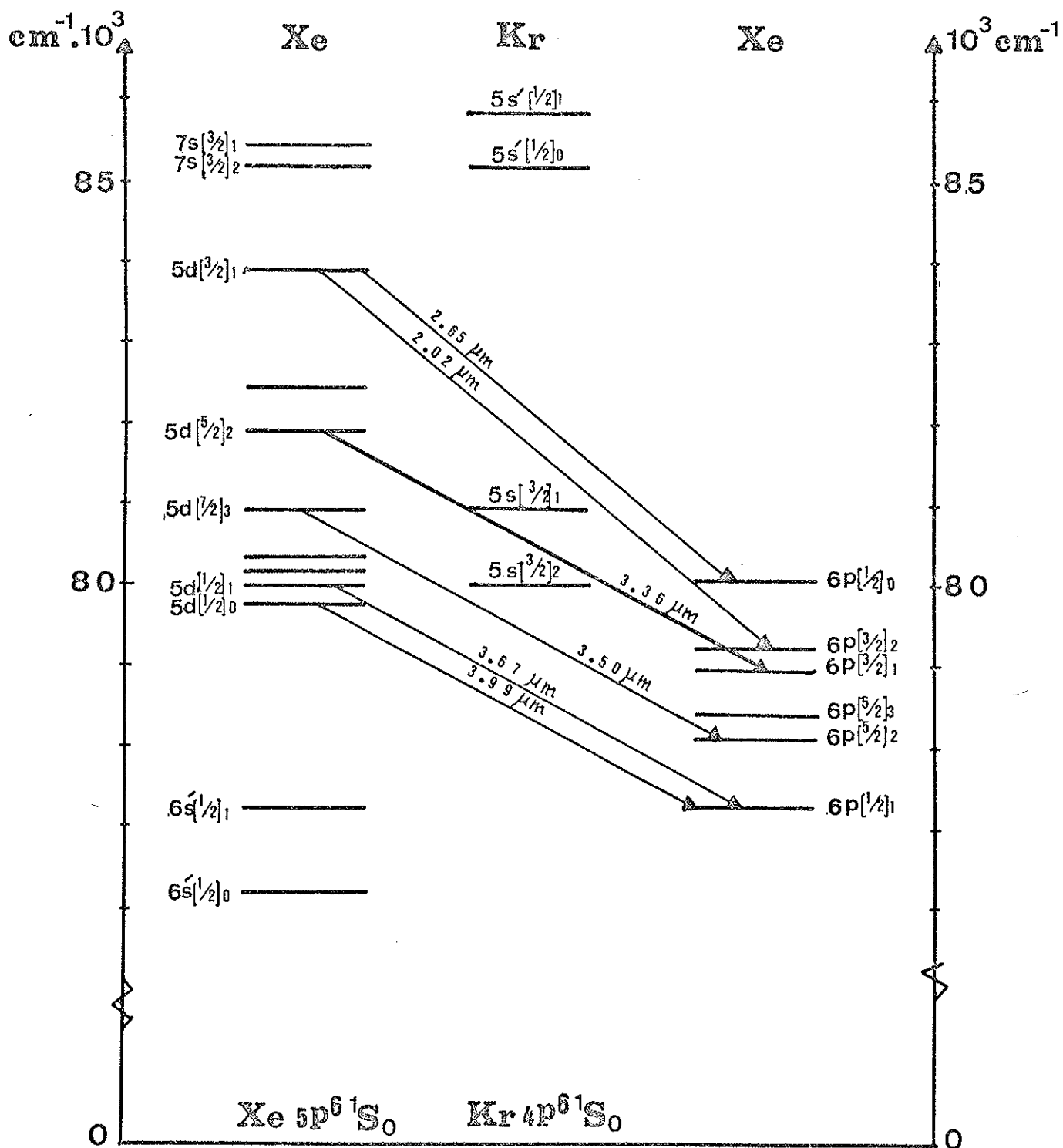


Figure 7

spontanée calculée par M. Aymar ($A = 5,9 \cdot 10^6 \text{ s}^{-1}$) semble assez favorable bien que le rapport de branchement soit faible.

Nous avons vu dans le chapitre précédent que la largeur des profils quasi-rectangulaires était liée au défaut d'énergie ΔW entre les niveaux impliqués dans le transfert ; l'identification du niveau du krypton responsable du transfert a donc été faite par M. Hugon [4] en comparant la largeur expérimentale obtenue avec les largeurs calculées en considérant successivement les deux transferts retenus. Les largeurs calculées associées aux deux transferts sont respectivement : pour le transfert à partir du niveau $5s'[1/2]_1$ du krypton : $\ell_{\sigma} = 3,7 \text{ mK}$ à une température de 90°K et $\ell_{\sigma} = 5,5 \text{ mK}$ à cette même température pour le transfert à partir du niveau $5s[3/2]_2$ du krypton. La largeur expérimentale obtenue à la température de l'oxygène liquide est en excellent accord avec la largeur calculée en supposant que le niveau du krypton responsable du transfert soit le niveau $5s[3/2]_2$. La comparaison profil calculé - profil expérimental est satisfaisante à cette température. Les résultats à 300°K sont également en bon accord.

Le niveau métastable $5s[3/2]_2$ du krypton paraît donc être responsable du transfert d'excitation qui perturbe les profils de la raie à $3,36 \mu\text{m}$ du xénon.

II. IDENTIFICATION EXPERIMENTALE DU NIVEAU DU KRYPTON DONNEUR D'EXCITATION.

1) Principe de la méthode utilisée.

La population transférée sur un niveau est proportionnelle à la population du niveau donneur d'excitation. Si le niveau métastable $5s[3/2]_2$ du krypton est bien le niveau donneur d'excitation lors du transfert vers le niveau $6p[3/2]_1$ du xénon, une modification de sa population doit amener une modification dans le même sens de la population transférée sur le niveau $6p[3/2]_1$. Cette modification de la population transférée peut être mise en évidence sur le profil d'absorption de la raie à $3,36 \mu\text{m}$ par une augmentation ou une diminution de l'absorption sur cette raie selon le sens de la modification de la population.

Nous avons choisi de dépeupler le niveau métastable du krypton par absorption ; en dépeuplant ce niveau nous devons observer une baisse de la population transférée, c'est-à-dire une diminution de l'absorption sur tout le profil de la raie à $3,36 \mu\text{m}$. De plus la différence entre les profils enregistrés respectivement avec et sans dépeuplement du métastable n'affecte que la population transférée.

Cette opération de dépeuplement du niveau $5s[3/2]_2$ du krypton peut être réalisée très efficacement si l'on dispose d'une transition du krypton dont la longueur d'onde se situe dans le domaine de fonctionnement des lasers à colorant et dont le niveau supérieur se désexcite préférentiellement vers un niveau autre que le niveau métastable. La transition

$5s[3/2]_2 - 5p'[1/2]_1$ ($\lambda = 5\ 570\ \text{\AA}$) réunit ces conditions. Son niveau supérieur a une durée de vie assez faible ($\tau = 27\ 10^{-9}\ \text{s}$ [21]) et les probabilités d'émission spontanée les plus fortes à partir de ce niveau correspondent aux transitions vers les niveaux $5s'[1/2]_0$ ($A = 19,5\ 10^6\ \text{s}^{-1}$) et $5s'[1/2]_1$ ($A = 14,9\ 10^6\ \text{s}^{-1}$) alors que la probabilité de transition vers le niveau $5s[3/2]_2$ n'est que $1,77\ 10^6\ \text{s}^{-1}$ [25] (figure 8). Ceci a deux conséquences : d'une part le métastable est dépeuplé efficacement, d'autre part ce dépeuplement s'accompagne d'un accroissement de la population du niveau $5s'[1/2]_1$. Si, donc, ce niveau est à l'origine des profils anormaux observés sur la raie à $3,36\ \mu\text{m}$ du xénon (par suite d'un transfert indirect), l'opération de dépeuplement du métastable amènera une augmentation de l'absorption sur tout le profil de la raie à $3,36\ \mu\text{m}$, alors que si le métastable est à l'origine du transfert on observera une diminution de l'absorption.

2) Montage expérimental.

Le montage utilisé est représenté sur la Figure 9. La radiation choisie pour dépeupler le niveau métastable du krypton est fournie par un laser à colorant accordable en fréquence. L'enregistrement du profil de la raie à $3,36\ \mu\text{m}$ est fait avec le montage décrit en (I.1), modifié de façon à assurer le passage du faisceau laser visible le long de l'axe du tube. Les deux faisceaux laser qui, par commodité, se propagent en sens inverse, doivent donc être superposés dans le tube à décharge.

Le laser à colorant que nous avons utilisé est de type Jet Stream (Spectra Physics modèle n° 375), il fonctionne en continu, le colorant

Xe

Kr

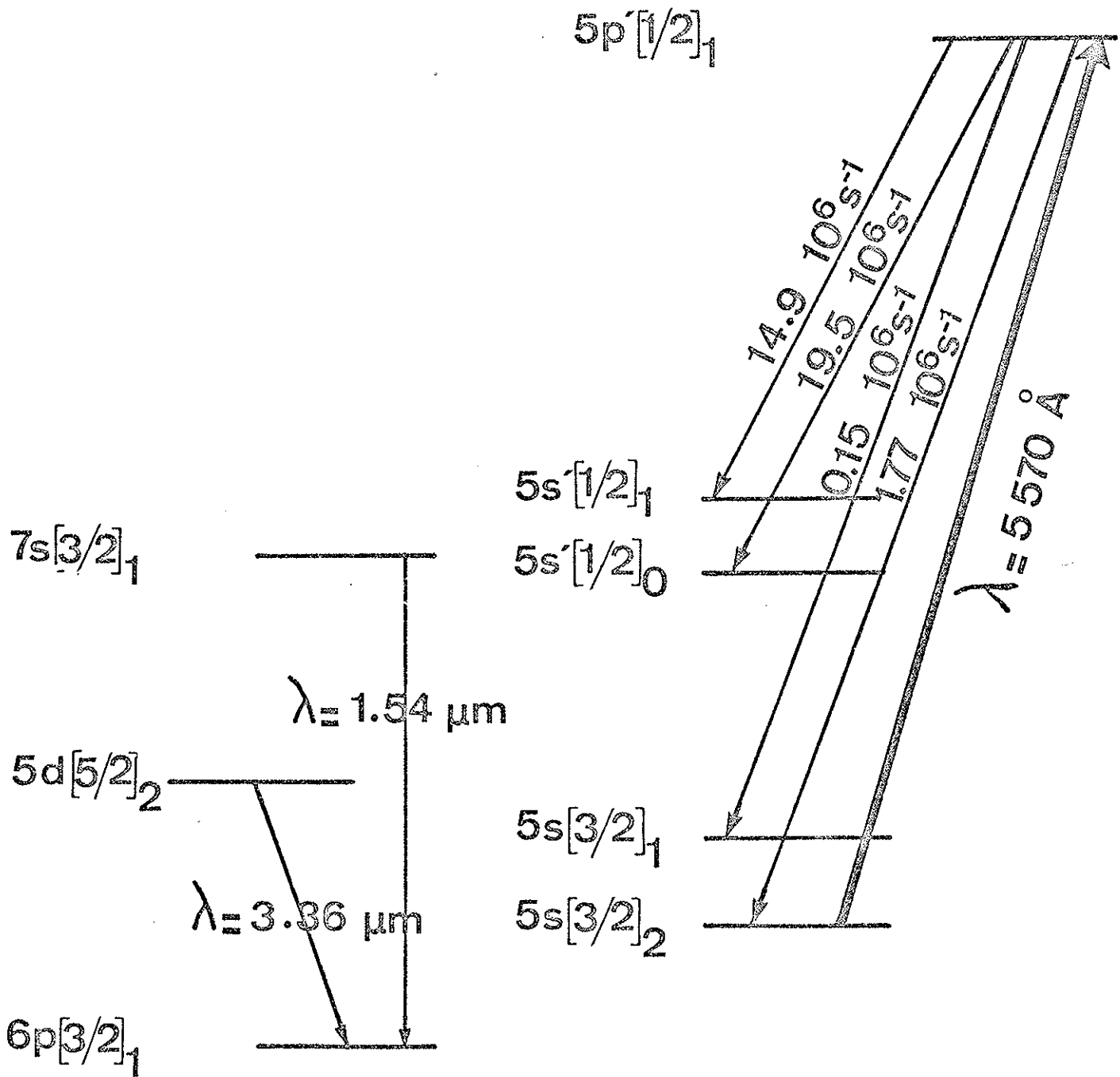


Figure 8

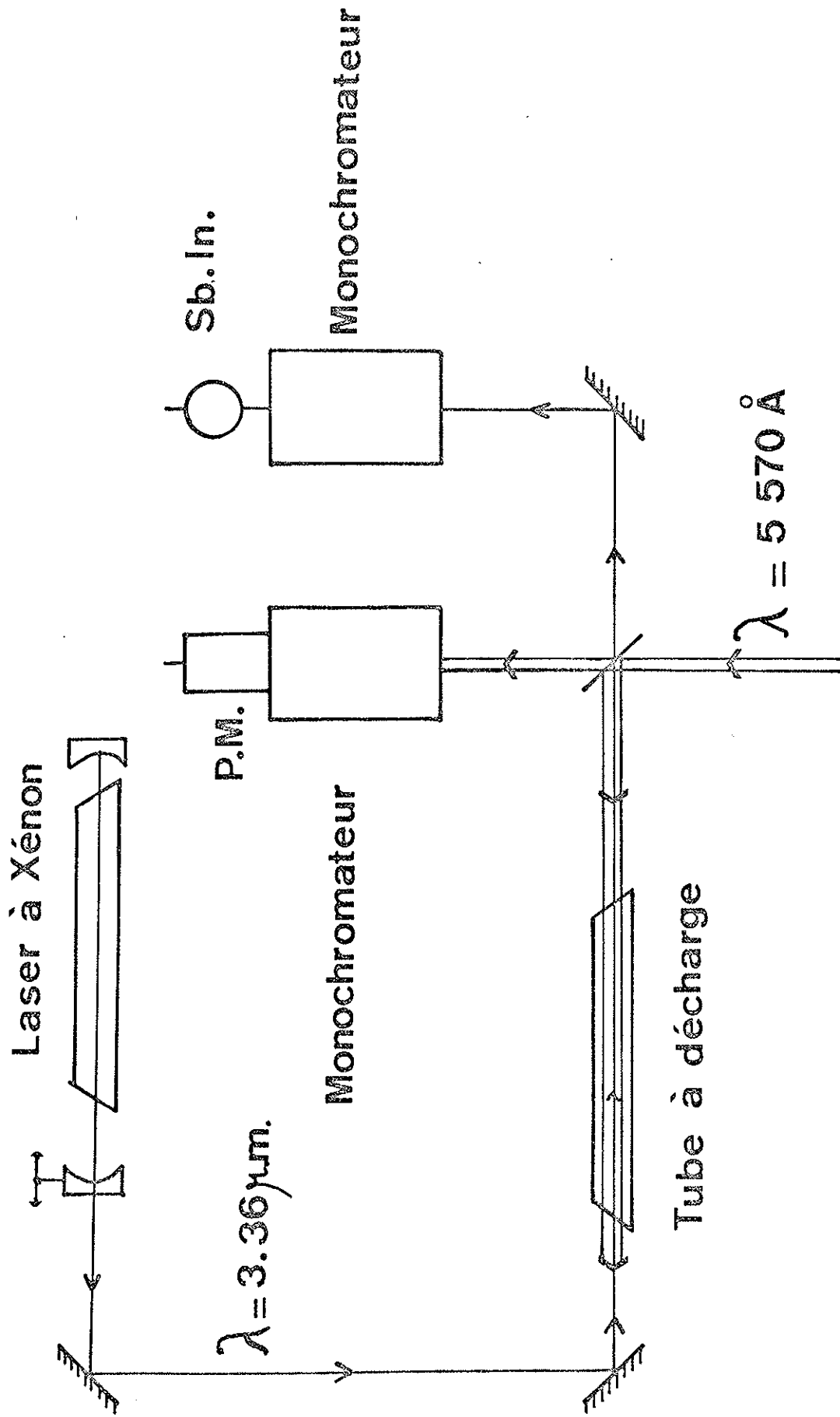


Figure 9

utilisé étant la Rhodamine 110. Il émet une puissance de quelques centaines de milliwatts sur un intervalle spectral d'environ 1 cm^{-1} et, de ce fait, seule une faible partie de la puissance est utilisée.

L'enregistrement des profils se fait de la façon suivante :

Pour une température donnée (généralement 90°K), pour un mélange xénon-krypton fixé et un courant de décharge déterminé, nous avons enregistré successivement :

- le profil d'absorption de la raie à $3,36 \mu\text{m}$ en dépeuplant le métastable par absorption du faisceau du laser à colorant ;
- le profil d'absorption de cette même raie en arrêtant le laser à colorant.

3) Résultats et Conclusion.

Pour la raie à $3,36 \mu\text{m}$ du xénon nous avons obtenu les profils représentés sur la Figure 10, respectivement : trace (a) sans laser à colorant, trace (b) avec laser à colorant. Il apparaît sur cette figure que l'utilisation du laser à colorant pour dépeupler le niveau métastable du krypton entraîne une diminution de l'absorption sur tout le profil de la raie à $3,36 \mu\text{m}$. La différence des profils obtenus (trace (a) - trace (b)) conduit à une courbe semblable à celle de la Figure 10, qui n'est pas un profil caractéristique de transfert.

Si l'utilisation du laser à colorant n'avait eu pour conséquence que de diminuer la population transférée, le coefficient d'absorption $k(\nu)$

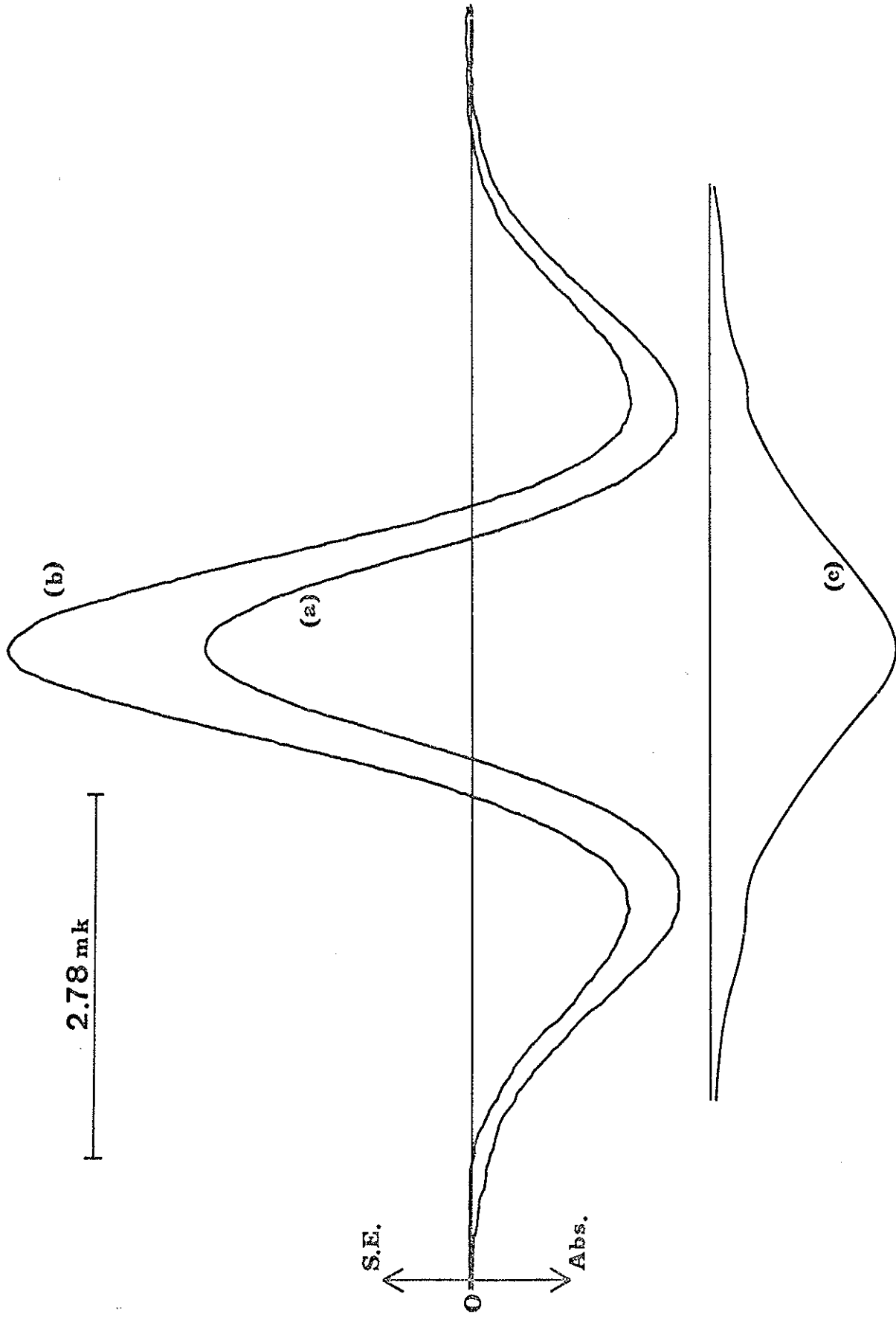


Figure 10

correspondant à la différence des profils aurait été de la forme :

$$k(\nu) \propto \Delta n_i^t R_i^t(\nu) \quad .$$

En fait, des effets secondaires du dépeuplement se traduisent par l'apparition d'une variation de la différence des populations normales des niveaux : $k(\nu)$ est, au moins approximativement, de la forme :

$$k(\nu) \propto \left\{ \Delta n_i^t R_i^t(\nu) + (\Delta n_i^n - \Delta n_s) G(\nu) \right\}$$

comme le montrent les profils expérimentaux.

Pour expliquer ces effets secondaires du pompage diverses hypothèses peuvent être avancées. On peut supposer que le fait de dépeupler le niveau métastable avec un laser perturbe les mécanismes d'excitation électronique des atomes aussi bien pour les atomes de krypton que pour ceux de xénon. Il peut alors se produire des variations de population des niveaux même si ces niveaux ne sont pas impliqués dans le transfert. De plus, le dépeuplement du niveau métastable diminue l'efficacité des transferts peuplant les niveaux des configurations $5p^55d$ et $5p^56p$ du xénon qui, par l'intermédiaire de transitions radiatives, peuplent les niveaux de la configuration $5p^56s$ où la thermalisation intervient et qui sont le départ d'excitations électroniques. Toutefois ces deux explications possibles des effets secondaires du dépeuplement du métastable ne sont que des hypothèses car ces phénomènes sont assez peu connus.

Cette expérience de dépeuplement du niveau métastable du krypton par un laser à colorant a permis, malgré l'apparition de phénomènes secondaires, de confirmer que le niveau $5s[3/2]_2$ du krypton est bien le niveau

responsable des profils anormaux observés sur la raie à $3,36 \mu\text{m}$. Cette expérience nous a également permis de mettre en évidence d'autres transferts d'excitation à partir de ce niveau du krypton. En effet, la raie à $3,50 \mu\text{m}$ ($6p[5/2]_2 - 5d[7/2]_3$) présente en présence de krypton des profils d'absorption semblables à ceux observés pour la raie à $3,36 \mu\text{m}$. Le dépeuplement du niveau métastable donne les mêmes résultats que pour la raie à $3,36 \mu\text{m}$, le profil associé au transfert étant, pour la raie à $3,50 \mu\text{m}$, plus large et d'intensité relative plus faible. On peut toutefois en déduire que ce transfert se fait entre le niveau métastable du krypton et le niveau $6p[5/2]_2$ du xénon.

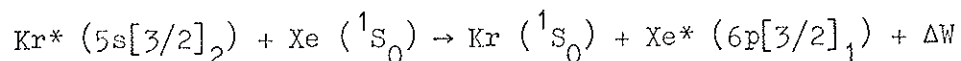
De même l'amplification de la raie à $3,68 \mu\text{m}$ ($6p[1/2]_1 - 5d[1/2]_1$) est considérablement diminué, ce qui s'explique par le transfert quasi-résonnant entre le niveau métastable $5s[3/2]_2$ du krypton et le niveau $5d[1/2]_1$ du xénon.

Nous nous sommes, en règle générale, plus particulièrement intéressés au transfert vers le niveau $6p[3/2]_1$ du xénon. La confirmation expérimentale de l'origine de ce transfert nous a permis d'envisager la mesure de la section efficace Q de ce transfert. Ceci constitue l'étape suivante de notre travail.

CHAPITRE III

MESURE DE LA SECTION EFFICACE Q DE TRANSFERT

Le transfert de produisant entre les niveaux $5s[3/2]_2$ du krypton et $6p[3/2]_1$ du xénon peut être représenté par la relation suivante :



avec $\frac{\Delta W}{hc} = 1\,016 \text{ cm}^{-1}$.

(Le schéma simplifié des niveaux du krypton et du xénon intervenant dans le transfert est représenté sur la Figure 1).

Nous avons vu au Chapitre I que la section efficace thermique de transfert Q_T est définie en fonction de la vitesse de transfert

$\left[\frac{dN(\text{Xe}^*)}{dt} \right]_T$ par :

$$\left[\frac{dN(\text{Xe}^*)}{dt} \right]_T = N(\text{Kr}^*) N(\text{Xe}) Q_T \overline{v_r}$$

La densité $N(\text{Xe})$ d'atomes de xénon dans l'état fondamental est déterminée par une mesure de pression, la température, voisine de celle du bain, étant connue avec une précision suffisante.

La vitesse relative moyenne des atomes est :

$$\overline{v_r} = \sqrt{\frac{8kT}{\pi\mu}}$$

où μ est la masse réduite xénon-krypton.

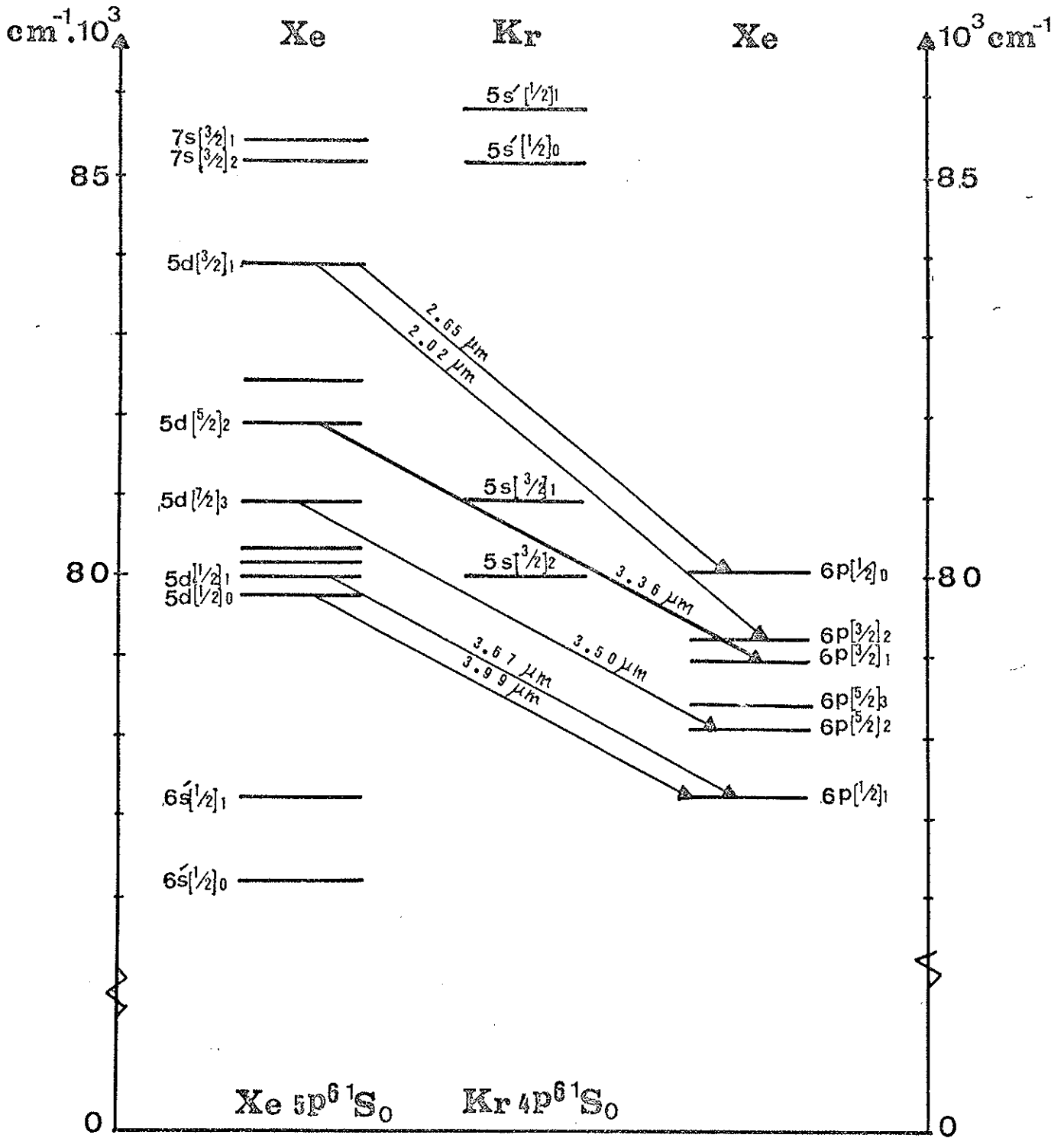


Figure 1

Pour calculer la valeur de la section efficace Q_T nous devons mesurer la population du niveau $5s[3/2]_2$ du krypton et déterminer

$\left[\frac{dN(\text{Xe}^*)}{dt} \right]_T$. En régime permanent on a :

$$\left[\frac{dN(\text{Xe}^*)}{dt} \right]_T = \frac{1}{\tau} N(\text{Xe}^*)_T$$

où τ est ici la durée de vie du niveau $6p[3/2]_1$ et $N(\text{Xe}^*)_T$ la fraction de sa population due au transfert. τ diffère peu de la durée de vie radiative qui est connue (35 ns) [21].

Il est donc possible de calculer la section efficace Q_T à partir de deux mesures de population : l'une est faite par une mesure d'absorption sur des raies visibles, l'autre (la population du niveau receveur) est mesurée par absorption sur la raie infra-rouge à 3,36 μm .

I. PRINCIPE DE MESURE DE POPULATION PAR ABSORPTION.

Après avoir rappelé les définitions des différentes grandeurs que nous utiliserons, nous présentons le principe général d'une mesure de population en absorption. L'application de ce principe général aux niveaux, que nous considérons ici, sera traité ensuite.

1) Absorption monochromatique.

a) Définitions de diverses grandeurs.

Si une source émet une radiation monochromatique d'intensité $I_i(\nu)$ qui traverse une cuve absorbante homogène de longueur ℓ , l'intensité transmise $I_t(\nu, \ell)$ est liée à l'intensité incidente par la relation :

$$I_t(\nu, \ell) = I_i(\nu, 0) \exp[-k(\nu) \ell] \quad (1)$$

$k(\nu) \cdot \ell$ est l'épaisseur optique pour la fréquence ν . Le coefficient total d'absorption $k = \int_{\text{raie}} k(\nu) d\nu$ est relié aux probabilités de transition A_{ji} , aux populations N_i et N_j des niveaux inférieurs et supérieurs de la transition considérée et aux poids statistiques de ces niveaux par la relation :

$$k = \frac{\lambda^2}{8\pi} \frac{g_j}{g_i} A_{ji} N_i \left(1 - \frac{g_i N_j}{g_j N_i}\right) \quad (2)$$

Lorsque dans l'expression (2) le terme $\frac{g_i N_j}{g_j N_i}$ peut être négligé devant 1 (ce qui est généralement le cas pour les premiers niveaux excités, la mesure de k permet d'obtenir la population du niveau inférieur

de la transition considérée si l'on connaît la valeur de la probabilité d'émission spontanée A_{ji} associée à la raie.

Si l'on dispose d'un laser monomode, accordable en fréquence sur toute la raie d'absorption, on peut obtenir la valeur du coefficient d'absorption $k(\nu)$ en chaque point du profil et en déduire k par simple intégration.

b) Population du niveau $6p[3/2]_1$ du xénon due au transfert.

Nous avons vu dans le chapitre précédent que les profils anormaux obtenus en absorption sur la raie à $3,36 \mu\text{m}$ du xénon pouvaient être interprétés par l'existence d'un transfert d'excitation sur le niveau inférieur de la raie, le coefficient d'absorption $k(\nu)$ pouvant se mettre sous la forme :

$$k(\nu) \propto \left\{ n_i^t R_i^t(\nu) + (n_i^n - n_s) G(\nu) \right\} \quad . \quad (\text{II}; (2))$$

Selon les valeurs données au courant de décharge on obtient successivement les profils représentés sur la figure (2) $\left\{ (n_i^n - n_s) = 0 \right.$, l'égalisation des populations normales des niveaux supérieur et inférieur est réalisée) et sur la figure (3) $\left. (n_i^n - n_s) \neq n_i^t \right.$.

Lorsqu'on a réalisé l'égalisation des populations normales, le profil enregistré (Figure 2) est le profil quasi-rectangulaire associé au transfert. Notre montage expérimental décrit dans le chapitre précédent nous permet de n'enregistrer que les petites variations $\Delta I(\nu)$ de la fraction absorbée. La valeur de la population transférée sur le niveau $6p[3/2]_1$ du xénon est proportionnelle au coefficient total d'absorption k correspondant au seul profil quasi-rectangulaire.

$\lambda = 3.36 \text{ } \mu\text{m}$ Xe + Kr

$p. = 0.1 \text{ Torr}$ $T = 90 \text{ K}$

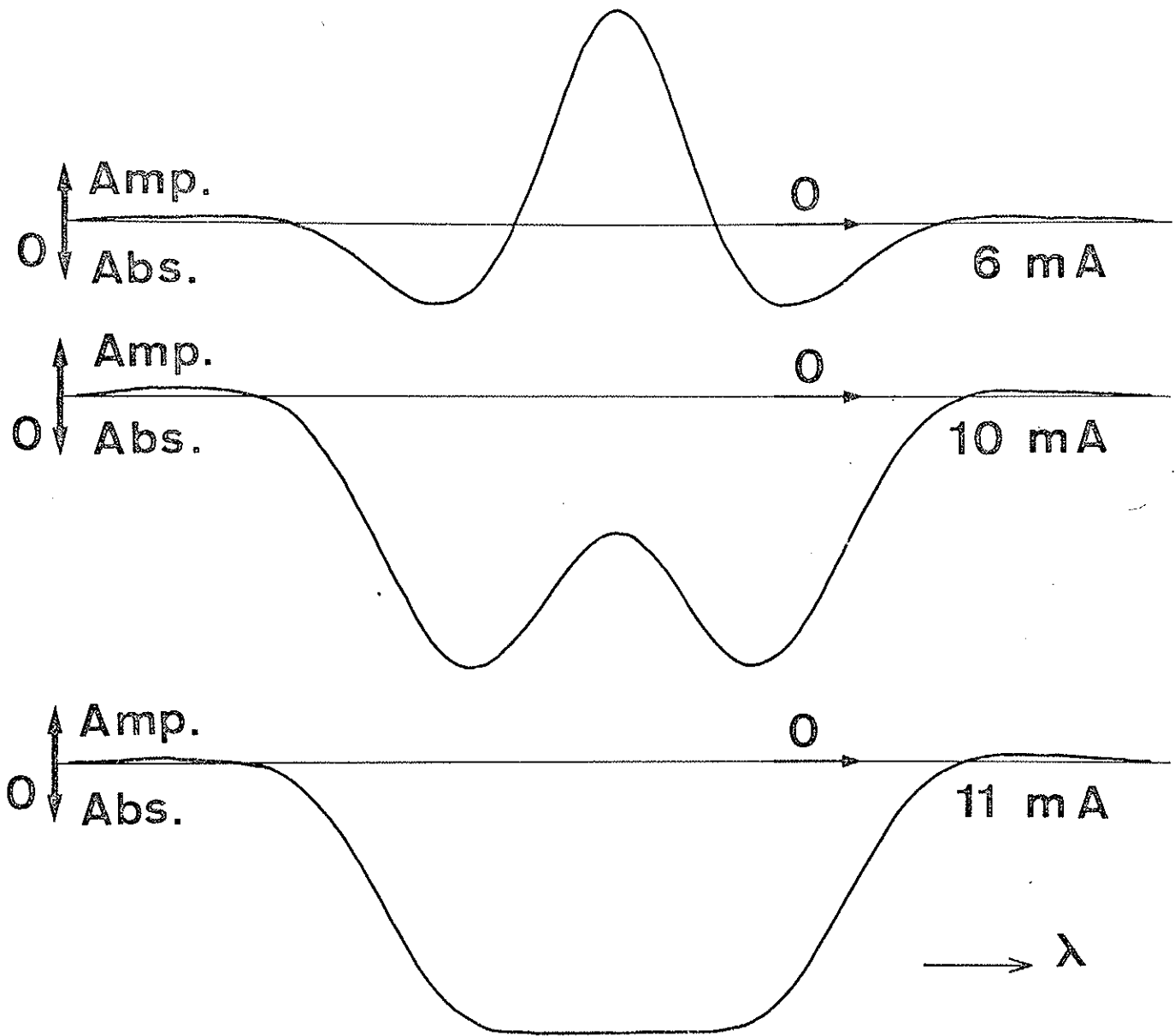


Figure 2 : Trace inférieure

Figure 3 : Trace supérieure

Lorsque le profil enregistré est semblable à celui représenté sur la Figure 3, il faut "extraire" le profil quasi-rectangulaire du profil enregistré (Figure 4). La température ($T \approx 100^\circ\text{K}$) est connue par des expériences antérieures [4] et la largeur Doppler est :

$$\Delta\sigma_D = 7,16 \cdot 10^{-7} \sigma \sqrt{\frac{T}{M}} \quad \text{soit } 1,87 \text{ mK} .$$

On place la mi-hauteur de la gaussienne sur le profil à l'aide de cette valeur de $\Delta\sigma_D$ ce qui détermine la hauteur de cette gaussienne et sa ligne de base. Cette ligne est aussi le plateau du profil quasi-rectangulaire dont la largeur est supposée être supérieure à $\Delta\sigma_D$ (si l'absorption est faible on peut opérer directement sur l'enregistrement : cas de la Figure 5). Il suffit ensuite de construire point par point cette gaussienne et de reconstituer le profil rectangulaire par différence.

Les conditions les plus favorables pour extraire le profil quasi-rectangulaire du profil enregistré seront celles où la hauteur de la gaussienne est comparable ou inférieure à la hauteur du plateau. Elles sont en général obtenues à la température de l'oxygène liquide pour des courants de décharge voisins de 10 mA à la pression de vapeur saturante de xénon (55 mTorr à cette température).

L'incertitude sur la mesure de la population transférée, liée à cette "extraction" du plateau, est estimée à moins de 10% aux températures de l'azote et de l'oxygène liquide et pour des pressions pas trop élevées. A la température ambiante (300°K) et surtout aux plus fortes pressions utilisées, la précision est moindre car la gaussienne est plus large, le profil quasi-rectangulaire n'est plat que sur une largeur plus faible et

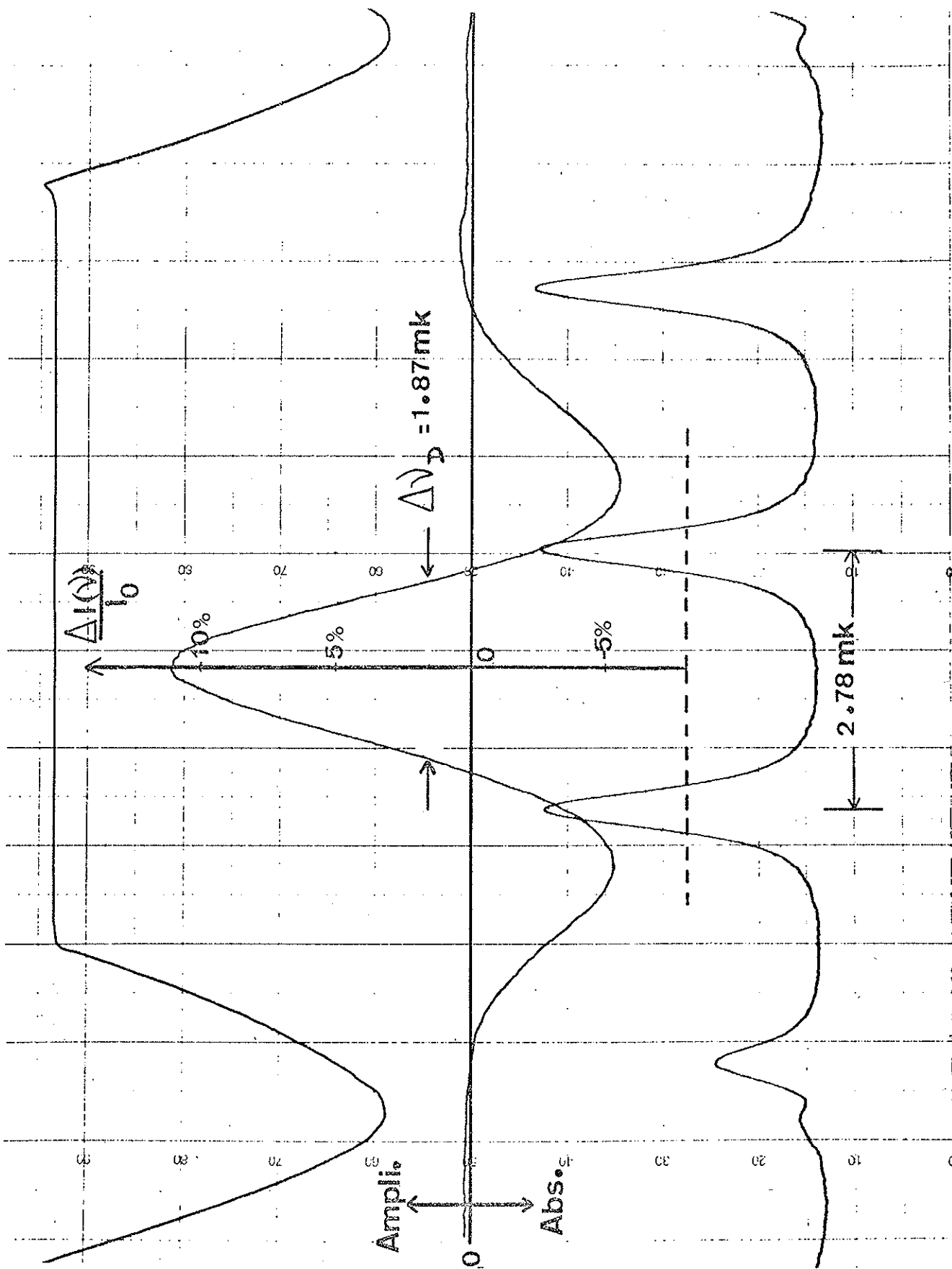


Figure 4

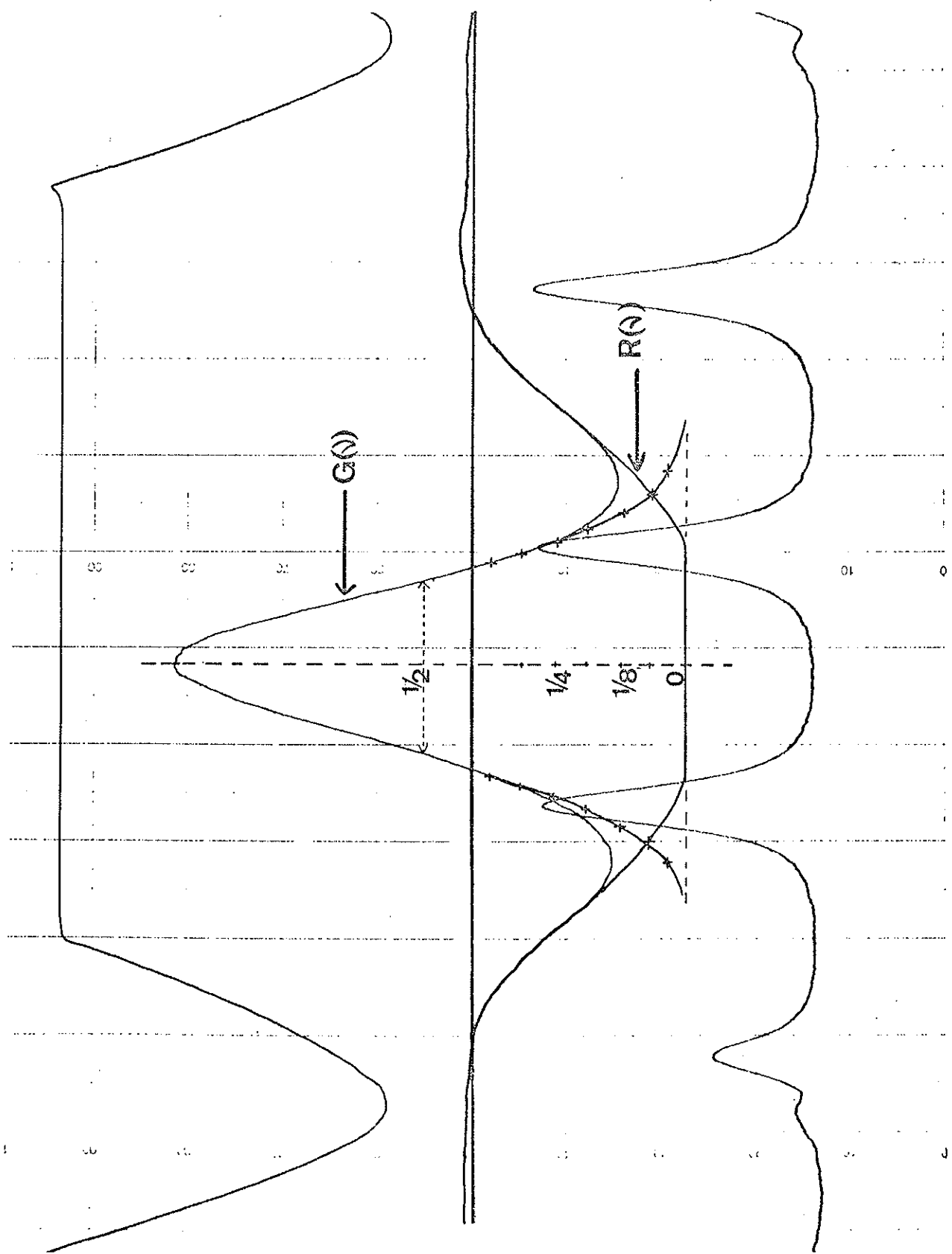


Figure 5

les effets de thermalisation sont accrus. Ces causes d'imprécision entraînent en plus une erreur systématique liée à notre méthode simplifiée de dépouillement qui sous-estime la hauteur du profil quasi-rectangulaire. Une correction est possible, nous ne l'avons pas faite pour être sûr de connaître le signe de cette erreur systématique. La mesure de la population du niveau métastable du krypton est faite par une méthode plus couramment employée que nous exposons dans les paragraphes qui suivent.

2) Absorption totale sur une bande spectrale.

a) Rappels.

Si la source émet une raie d'intensité $I_0(\nu)$, l'intensité transmise après la traversée d'une cuve absorbante de longueur ℓ peut s'écrire :

$$I_t(\nu, \ell) = I_0(\nu) \exp [-k(\nu)\ell] \quad . \quad (3)$$

Posons $I_0(\nu) = I_0 P_s(\nu)$ et $k(\nu) = k P(\nu)$

avec I_0 intensité totale de la raie ; $P_s(\nu)$ et $P(\nu)$ sont des profils normalisés ($\int P_s(\nu) d\nu = \int P(\nu) d\nu = 1$) .

L'intensité totale transmise est :

$$I_t = I_0 \int_{\text{raie}} P_s(\nu) \exp [-k\ell P(\nu)] d\nu \quad . \quad (4)$$

On peut définir l'absorption A de la raie par rapport aux intensités totales incidentes et transmises par la formule :

$$A = 1 - \frac{I_t}{I_0} \quad .$$

D'après (4) on a :

$$A = \int_{\text{raie}} P_s(\nu) \{1 - \exp[-k\ell P(\nu)]\} d\nu \quad (5)$$

Si la source et la cuve absorbante sont rigoureusement identiques, le profil $P_s(\nu)$ du spectre émis par la source diffère de $P(\nu)$ par suite de l'autoabsorption. Le coefficient d'absorption $k(\nu)$ est le même que dans la cuve et

$$P_s(\nu) = \frac{1 - \exp[-k\ell P(\nu)]}{\int_{\text{raie}} (1 - \exp[-k\ell P(\nu)]) d\nu}$$

La relation (5) s'écrit alors :

$$A_L = \frac{\int_{\text{raie}} \{1 - \exp[-k\ell P(\nu)]\}^2 d\nu}{\int_{\text{raie}} \{1 - \exp[-k\ell P(\nu)]\} d\nu} \quad (6)$$

Pour les transitions dont le niveau inférieur est un niveau métastable, on considère généralement, qu'à basse pression, l'élargissement homogène est faible ; le profil $P(\nu)$ est donc proche d'un profil Doppler.

$$P(\nu) = \frac{1}{a\sqrt{\pi}} \exp\left[-\left(\frac{\nu-\nu_0}{a}\right)^2\right]$$

avec $\Delta\nu_D = 2a\sqrt{\log 2}$ où $\Delta\nu_D$ est la largeur Doppler de la raie.

L'équation (6) s'écrit alors :

$$A_L = \frac{\int_{\text{raie}} \left\{1 - \exp\left[-\frac{k\ell}{a\sqrt{\pi}} \exp\left[-\left(\frac{\nu-\nu_0}{a}\right)^2\right]\right]\right\}^2 d\nu}{\int_{\text{raie}} \left\{1 - \exp\left[-\frac{k\ell}{a\sqrt{\pi}} \exp\left[-\left(\frac{\nu-\nu_0}{a}\right)^2\right]\right]\right\} d\nu}$$

En posant $k_0 = k(v_0) = \frac{k}{a\sqrt{\pi}}$, nous obtenons pour A_L d'expression suivante :

$$A_L = \frac{\int_{\text{raie}} \left\{ 1 - \exp - \left[k_0 \ell \exp - \left(\frac{v-v_0}{a} \right)^2 \right] \right\}^2 dv}{\int_{\text{raie}} \left\{ 1 - \exp - \left[k_0 \ell \exp - \left(\frac{v-v_0}{a} \right)^2 \right] \right\} dv} \quad (7)$$

avec $k_0 = \frac{2}{\Delta V_D} \sqrt{\frac{\text{Log } 2}{\pi}} \frac{\lambda^2 \epsilon_j}{8\pi \epsilon_i} N_i A_{ji}$.

Cette technique de détermination de A_{ij} par la mesure de A_L est due à Ladenburg et Reiche [26] qui l'ont utilisée pour l'étude des raies de résonance. La Figure 6 extraite du livre "Resonance radiation and excited atoms" de Mitchell et Zemansky donne un tableau des valeurs de A_L pour les différentes valeurs de $k_0 \ell$ et la courbe correspondante.

Cette méthode sera utilisée pour déterminer la population N_i d'un niveau excité, A_{ij} étant connue.

On mesure successivement pour une raie donnée :

- l'intensité incidente I_1 , la cuve absorbante étant éteinte,
- l'intensité totale I_2 émise par la cuve absorbante, la source étant éteinte,
- l'intensité I_{12} recueillie quand la source et la cuve sont excitées.

On a : $I_{12} = I_2 + I_{1t}$.

De la mesure de ces 3 intensités on tire la valeur de A_L

$$A_L = 1 - \frac{I_t}{I_1} = \frac{(I_1 + I_2) - I_{12}}{I_1}$$

k_0	A_L	k_0	A_L	k_0	A_L
0.1	.070	1.1	.491	2.1	.675
0.2	.129	1.2	.516	2.2	.685
0.3	.181	1.3	.538	2.3	.695
0.4	.232	1.4	.562	2.4	.706
0.5	.284	1.5	.583	2.5	.715
0.6	.327	1.6	.602	2.6	.724
0.7	.366	1.7	.619	2.7	.732
0.8	.401	1.8	.634	2.8	.738
0.9	.433	1.9	.649	3.0	.750
1.0	.465	2.0	.662	4.0	.800

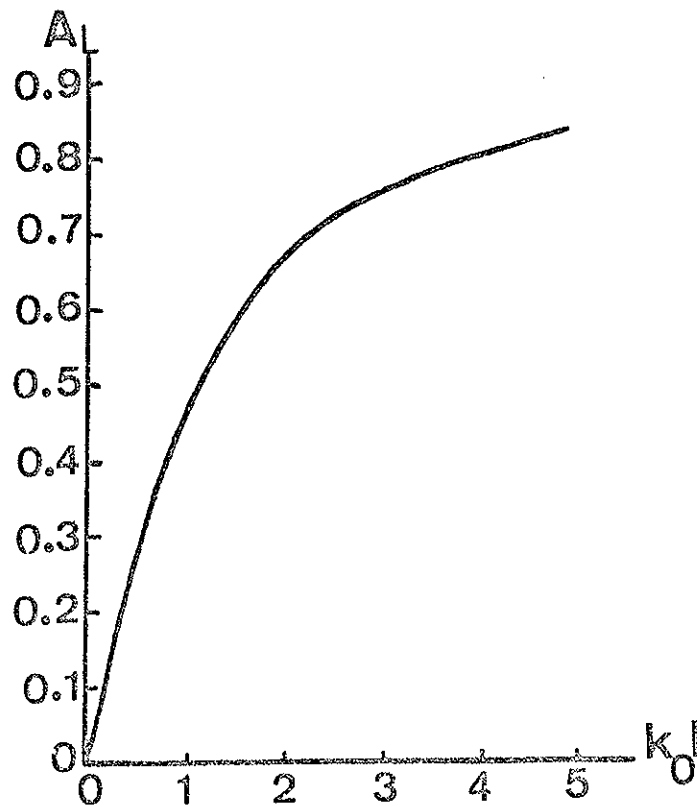


Figure 6

(Pour s'affranchir d'éventuelles dérives du signal, nous avons fait plusieurs fois les mêmes mesures d'intensité en alternance et en vérifiant entre deux mesures la stabilité du zéro de lumière).

Toutefois la détermination de la population à l'aide de cette méthode n'est valable que si la valeur de l'absorption A_L de la raie n'est pas trop grande. La Figure 6 le montre dans le cas d'un profil Doppler mais, en plus, on ne peut plus négliger les ailes du profil où la Lorentzienne devient importante car, au centre, l'intensité est saturée.

b) Population du niveau métastable $5s[3/2]_2$ du krypton :

Pour effectuer cette mesure de population en appliquant la méthode décrite précédemment, nous avons à notre disposition un certain nombre de raies appartenant au domaine visible, dont le niveau métastable est le niveau inférieur. Le choix que nous avons fait parmi elles sera justifié ultérieurement ; il repose principalement sur la nécessité d'avoir une valeur de l'absorption A_L faible (inférieure à 50%) et sur la détermination des valeurs des probabilités de transition de ces raies. Nous allons maintenant décrire l'appareillage utilisé pour cette mesure de population.

* Le tube à décharge :

Pour que la source et la cuve absorbante soient identiques, nous avons utilisé un tube à décharge muni de quatre électrodes chaudes réparties de façon à obtenir à l'intérieur du tube deux longueurs de décharge égales (Figure 7). Un commutateur haute tension à trois positions permet

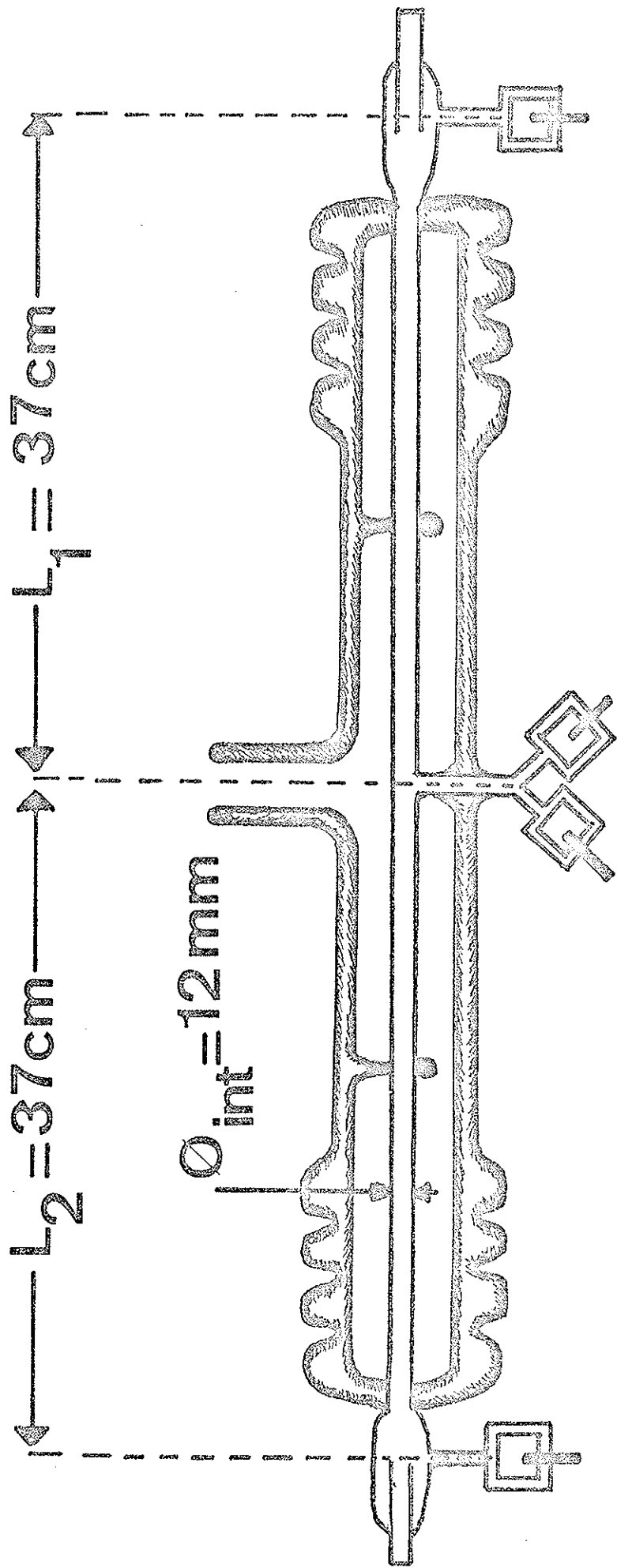


Figure 7

d'allumer soit l'une ou l'autre des deux moitiés du tube, soit la totalité de la décharge.

Ce tube en verre, de douze millimètres de diamètre intérieur, a une longueur utile de 74 centimètres et est limité à ses extrémités par deux fenêtres en fluorine (il est aussi traversé par le faisceau infra-rouge). La partie utile de ce tube est placée dans un vase Dewar dont elle est solidaire par construction, ce qui permet de travailler aux températures de l'azote et de l'oxygène liquide aussi bien qu'à la température ambiante.

Ce tube est relié à un banc à vide où une pression voisine de 10^{-5} mm de mercure est obtenue grâce à une pompe à diffusion de mercure. Ce banc, outre les réserves de krypton et de xénon isotopique, est muni d'une jauge du type Pirani utilisée pour mesurer la pression dans l'ensemble banc à vide et tube. Toutefois, ces mesures étaient fort imprécises car ce type de jauge est étalonné pour chaque gaz et non pour un mélange, nous avons donc aussi utilisé un capteur de pression. Ce capteur donnant avec précision la pression totale dans le tube, la mesure de la pression de l'un des gaz permet de connaître les pressions partielles du mélange.

* Dispositif optique.

Le système optique utilisé est représenté sur la Figure 8. Pour n'utiliser que la partie centrale du faisceau, une diaphragmation de ce faisceau est nécessaire. A la sortie du tube, le faisceau est diaphragmé par un trou circulaire D_1 de 6 mm de diamètre, situé à 24 cm d'une lentille convergente L_1 de 12 cm de distance focale. L'image de D_1 donnée par cette lentille se forme au foyer d'une seconde lentille

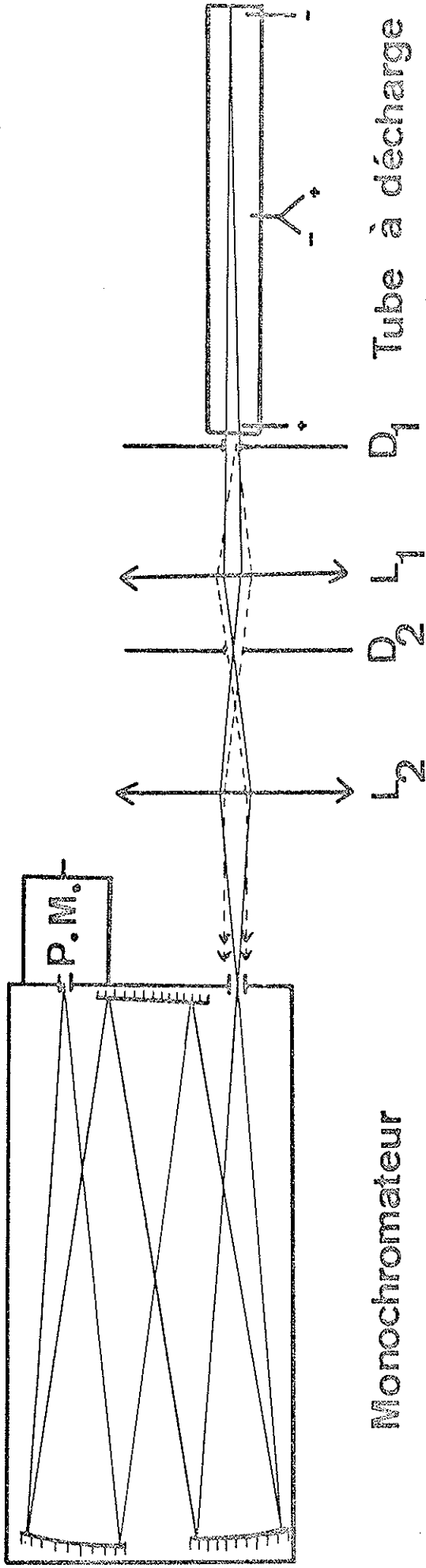


Figure 8

L_2 de 14 cm de distance focale. La face arrière du tube est diaphragmée par un trou circulaire D_2 placé sur l'image de cette face donnée par la lentille L_1 . Le diamètre de D_2 est donné par le grandissement de la lentille L_1 en prenant un diamètre de l'objet égal à 6 mm.

$$G_{L_1} = 0,109 = \frac{\phi_{Im}}{\phi_{obj}} \Rightarrow \phi_{D_2} = 0,7 \text{ mm} .$$

L'image du diaphragme D_2 donnée par la lentille L_2 est formée sur la fente d'entrée d'un monochromateur à réseau Jobin-Yvon de 1,50 m de focale qui permet d'isoler la raie choisie. Les fentes de ce monochromateur ont une largeur de 1,4 mm, c'est-à-dire une largeur spectrale de 7 \AA° . Le réseau utilisé comporte 1 200 traits par mm et la longueur d'onde pour laquelle sa réflexion est maximale est $\lambda = 1 \text{ \mu m}$ correspondant à une inclinaison de $37^{\circ}38'$. L'étalonnage de ce monochromateur est effectué et contrôlé à l'aide d'un laser à hélium-néon ($\lambda = 6328,3 \text{ \AA}^{\circ}$) et d'une lampe spectrale à hélium qui fournit des raies dans chacun des domaines spectraux utilisés pour les mesures d'absorption. Pour faciliter la recherche des raies qui nous intéressent, nous avons réalisé des enregistrements du spectre émis par le mélange xénon-krypton. Après la fente de sortie du monochromateur, le signal est recueilli par un photomultiplicateur (type Xb 1002) relié à un enregistreur par l'intermédiaire d'un pico-ampèremètre adaptateur d'impédance.

Après avoir décrit les méthodes que nous utilisons pour mesurer les populations des niveaux $6p[3/2]_1$ du xénon et $5s[3/2]_2$ du krypton, nous allons présenter les résultats que nous avons obtenus et en déduire la valeur de la section efficace Q caractérisant ce transfert.

II. MESURES ET RESULTATS.

Il faut souligner dès maintenant que les mesures de population des niveaux $6p[3/2]_1$ du xénon et $5s[3/2]_2$ du krypton doivent être faites dans les mêmes conditions de pression, de température et de courant de décharge. Pour un mélange donné à une température T donnée, le courant de décharge étant fixé, nous effectuons en alternance les mesures nécessaires à la détermination des populations des niveaux qui nous intéressent.

Avant de donner les résultats de nos mesures nous allons indiquer les raies utilisées pour mesurer la population du niveau métastable du krypton ainsi que les raisons de ce choix.

1) Choix des raies du krypton.

Nous avons vu que la validité de la méthode de Ladenburg et Reiche suppose que l'absorption A_L de la raie est faible. Nous devons donc, parmi les raies visibles à notre disposition, éliminer celles pour lesquelles la valeur mesurée de l'absorption A_L est trop grande. Nous nous sommes fixés comme limite les valeurs de l'absorption A_L qui correspondent à la partie quasi-linéaire de la courbe, donnant A_L en fonction de $k_0 l$, représentée sur la Figure 6.

Le tableau 1 indique les raies visibles dont nous pouvons a priori envisager l'utilisation pour les mesures d'absorption à partir du niveau métastable $5s[3/2]_2$ du krypton.

λ Å	Niveau supérieur
3 496	$6p'[3/2]_2$
3 503	$6p'[1/2]_1$
3 512	$6p'[3/2]_1$
4 253	$6p[3/2]_1$
4 274	$6p[3/2]_2$
4 318	$6p[5/2]_2$
4 319	$6p[5/2]_3$
4 363	$6p[1/2]_1$
5 562	$5p'[3/2]_2$
5 570	$5p'[1/2]_1$
5 672	$5p'[3/2]_1$
7 601	$5p[3/2]_2$
7 694	$5p[3/2]_1$
8 104	$5p[5/2]_2$
8 113	$5p[5/2]_3$
8 928	$5p[1/2]_1$

Tableau 1

Longueurs d'onde et niveaux supérieurs des premières transitions du krypton dont le niveau inférieur est le niveau $5s[3/2]_2$.

Auteur	4 273 Å	4 319 Å	4 362 Å	7 601 Å	7 694 Å
Miller (mesure)	0,18	0,12	0,08	0,41	0,05
(mesure) Murphy (calcul)	1,23	0,88	0,40	9,8	1,7
	0,81	1,7	1,04		
M. Aymar (calcul)	0,91	1,10	0,97	15,7	2,7

Tableau 2

	4 273 Å	4 319 Å	4 362 Å	7 601 Å	7 694 Å
Valeurs expérimentales		1,63			
	1,24	1,10	0,87	3,42	1,30
	0,95	1,08*	0,53	2,80	2,61*
	0,99	0,97	1,3	2,10	2,41*
	1,08*	0,88*	0,91	2,33	1,20
	1,27*	1,14*	1,38	2,70	1,10
	1,00*	1,52			1,24
		1,02			1,25
Valeur moyenne	1,09	1,17	0,98	2,7	1,6

Tableau 3

Valeurs relatives des probabilités de transition rapportées
à celle de la raie à 5 570 Å

* Mesures faites à 300°K.

La raie à $7\ 601\ \text{\AA}$ et celle à $7\ 694\ \text{\AA}$ ont été éliminées dans certains cas (100°K) car les valeurs de l'absorption A_L mesurées étaient trop fortes.

Certaines raies ($8\ 928\ \text{\AA}$, $3\ 496\ \text{\AA}$, $3\ 503\ \text{\AA}$ et $3\ 512\ \text{\AA}$) ont été supprimées parce qu'elles n'entrent pas dans le domaine de réponse du photomultiplicateur.

La raie à $8\ 104\ \text{\AA}$ ($5s[3/2]_2 - 5p[5/2]_2$) a donné des résultats incohérents. Nous l'avons éliminée par crainte d'un peuplement excessif du niveau supérieur car, dans certaines conditions de pression et pour une décharge pulsée, le quenching du niveau métastable a permis d'obtenir une inversion de population entre les niveaux supérieur et inférieur de cette transition et d'observer un effet laser.

D'autres raies ($4\ 253\ \text{\AA}$, $5\ 562\ \text{\AA}$ et $5\ 672\ \text{\AA}$) n'ont pas été utilisées car leur intensité en émission est trop faible.

Le choix des valeurs des probabilités de transition associées aux raies que nous allons utiliser nous a posé un problème ; en effet, bien qu'assez peu de valeurs soient données pour les transitions du krypton, ces valeurs sont assez différentes selon les auteurs. Nous allons donc présenter les différentes sources dont nous disposons et justifier le choix que nous avons fait parmi elles. Les travaux expérimentaux effectués sur le krypton en vue de mesurer des probabilités de transition sont assez peu nombreux ; outre ceux de Miller [27] il y a les travaux de

Murphy [28] basés sur des mesures d'intensité relative et ceux de Pery-Thorne et Chamberlain [29] utilisant la méthode des crochets. Des calculs théoriques de probabilités de transition ont été faits par Murphy [28] ainsi que par M. Aymar [21] en tenant compte partiellement des couplages intermédiaires.

Les données expérimentales étant des probabilités de transition relatives, nous présentons dans le tableau 2 des valeurs rapportées à la raie à $5\,570\text{ \AA}^{\circ}$ (Les valeurs relatives données par Pery-Thorne et Chamberlain, ne portant que sur les raies de longueur d'onde supérieure à $7\,600\text{ \AA}^{\circ}$, ne figurent pas dans ce tableau).

Nos rapports expérimentaux avec également la raie à $5\,570\text{ \AA}^{\circ}$ comme référence sont donnés dans le tableau 3.

Sur les raies à $4\,273\text{ \AA}^{\circ}$, $4\,319\text{ \AA}^{\circ}$ et $4\,368\text{ \AA}^{\circ}$ l'accord entre nos mesures et les résultats théoriques de M. Aymar semble satisfaisant. C'est à l'aide de ces raies que nous déterminons la population du métastable en utilisant les valeurs des probabilités de transition calculées par M. Aymar.

Le désaccord entre les calculs de M. Aymar et nos rapports expérimentaux pour les raies à $7\,601\text{ \AA}^{\circ}$ et $7\,694\text{ \AA}^{\circ}$ vient du fait que ces raies sont fortement absorbées dans nos expériences (pour $\lambda = 7\,601\text{ \AA}^{\circ}$, A_L varie de 49% à 84%). La valeur réelle de k_0^l devrait être plus grande que la valeur déduite de nos expériences ; nos rapports expérimentaux sont donc inférieurs à ce qu'ils devraient être. Nous avons constaté qu'à 300K la raie à $7\,694\text{ \AA}^{\circ}$ donne des résultats qui semblent corrects bien

que A_L soit élevé. Nous n'avons pas d'explication plausible de ce fait. Le seul élément favorable évident est l'accroissement du rapport : largeur Doppler/largeur homogène. Il paraît insuffisant et la population mesurée en utilisant cette raie devrait être sous estimée même à 300 K .

Les valeurs des probabilités de transition calculées par M. Aymar pour les différentes raies que nous utilisons sont données dans le tableau suivant :

$\lambda(\text{Å})$	4 273	4 319	4 362	5 570	7 694
$A_{si} (s^{-1})$	$1,6 \cdot 10^6$	$1,94 \cdot 10^6$	$1,72 \cdot 10^6$	$1,77 \cdot 10^6$	$4,74 \cdot 10^6$

2) Résultats :

Nous donnons dans les tableaux 4 à 11 les valeurs de la population du niveau métastable du krypton obtenues dans différentes conditions expérimentales ainsi qu'une estimation de l'incertitude due aux mesures d'intensité. Les écarts que l'on observe entre les valeurs déterminées pour les différentes raies sont plus importants et ne peuvent s'expliquer qu'en partie par les erreurs sur les probabilités de transition calculées. L'erreur estimée finale tient compte de ce fait. Toutes les mesures de population faites à la température de l'oxygène liquide (90 K) correspondent à une pression de xénon égale à la pression de vapeur saturante du gaz à cette température, soit 55 mT (figure 9).

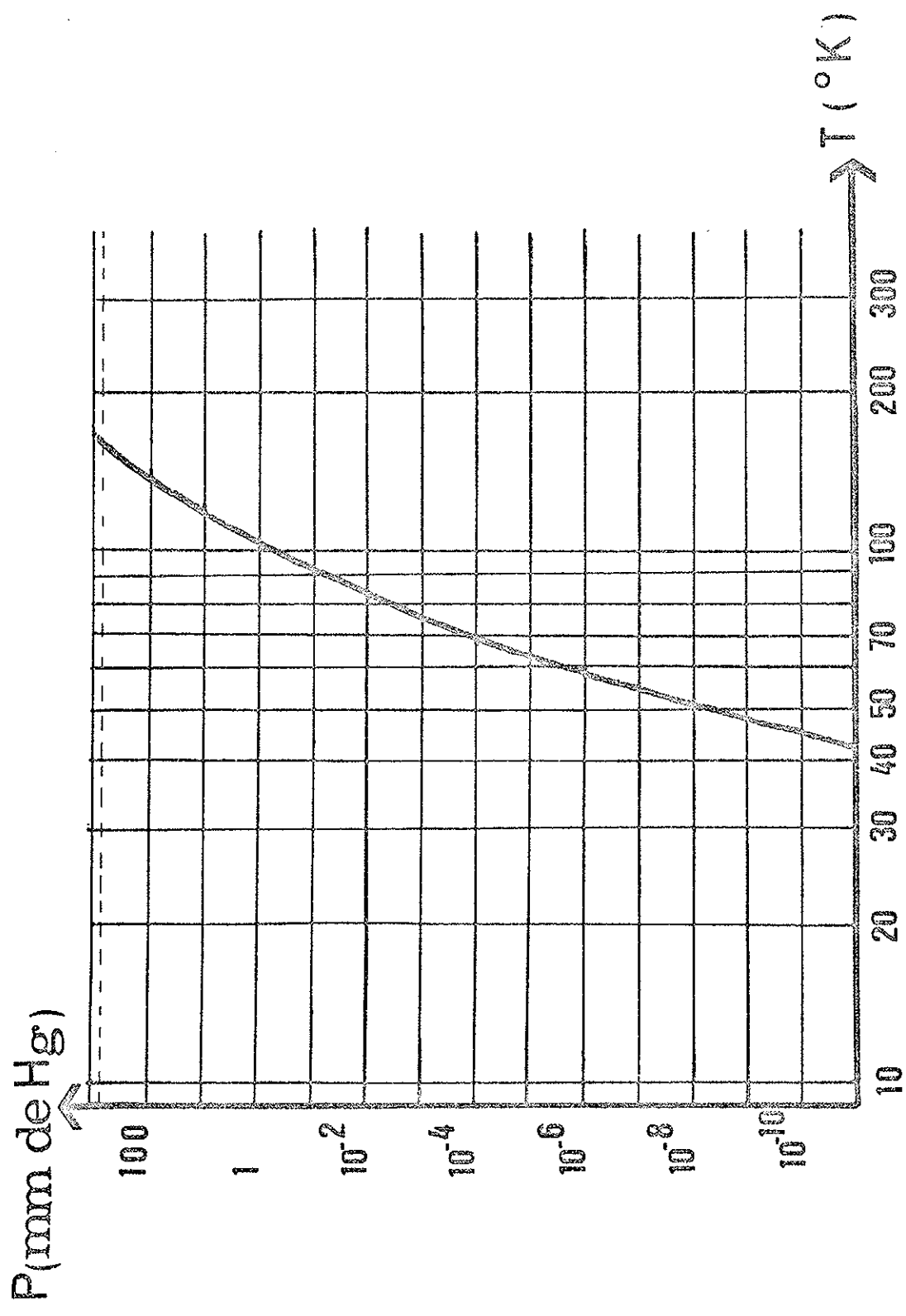


Figure 9
 Pression de vapeur saturante du Xe
 en fonction de la température absolue.

A partir des valeurs de la population obtenues dans des conditions expérimentales données par les mesures d'absorption sur différentes raies, nous déduisons une valeur moyenne $\overline{N(Kr^*)}$ que nous utiliserons pour calculer la section efficace Q de transfert. Chaque valeur moyenne est affectée d'une incertitude correspondant à la dispersion des résultats de cette série de mesures.

Les valeurs de la population correspondant aux mesures faites à 90 K pour la raie à $7\ 694\ \overset{\circ}{\text{Å}}$ ne sont citées qu'à titre indicatif et n'ont pas été prises en considération pour le calcul de $\overline{N(Kr^*)}$.

Quelques essais de mesure de population du niveau métastable à la température de l'azote liquide (77 K) ont été faits. La pression de vapeur saturante du xénon à cette température est de 3 mT ; le quenching du niveau métastable est faible et l'absorption A_L des raies du krypton est alors trop forte pour que nous puissions utiliser ces mesures.

$$P_{\text{Kr}} = 245 \text{ mT}$$

$$J = 12 \text{ mA}$$

$$T = 90 \text{ K}$$

λ_A°	A_L	ΔA_L	$k_0 \ell$	$\Delta(k_0 \ell)$	$N(\text{Kr}^*)$ cm^{-3}	$\Delta N(\text{Kr}^*)$ cm^{-3}
4 273	0,067	0,002	0,096	0,003	$13,4 \cdot 10^9$	$0,4 \cdot 10^9$
4 319	0,087	0,005	0,130	0,009	$9,8 \cdot 10^9$	$0,7 \cdot 10^9$
4 362	0,051	0,002	0,073	0,003	$14 \cdot 10^9$	$0,7 \cdot 10^9$
5 570	0,075	0,002	0,108	0,004	$9,8 \cdot 10^9$	$0,4 \cdot 10^9$
7 694	0,216	0,009	0,370	0,020	$4,8 \cdot 10^9$	$0,3 \cdot 10^9$

$$\overline{N(\text{Kr}^*)} = (11,7 \pm 2,3) \cdot 10^9 \text{ cm}^{-3}$$

Tableau 4

$$P_{\text{Kr}} = 225 \text{ mT}$$

$$J = 13 \text{ mA}$$

$$T = 90 \text{ K}$$

λ_A°	A_L	ΔA_L	$k_0 \ell$	$\Delta(k_0 \ell)$	$N(\text{Kr}^*)$ cm^{-3}	$\Delta N(\text{Kr}^*)$ cm^{-3}
4 273	0,066	0,002	0,094	0,003	$12,4 \cdot 10^9$	$0,4 \cdot 10^9$
4 319	0,089	0,004	0,132	0,007	$10,2 \cdot 10^9$	$0,6 \cdot 10^9$
4 362	0,056	0,004	0,080	0,006	$15,2 \cdot 10^9$	$1,2 \cdot 10^9$
5 570	0,085	0,006	0,125	0,011	$11,4 \cdot 10^9$	$1,1 \cdot 10^9$
7 694	0,213	0,010	0,363	0,020	$4,7 \cdot 10^9$	$0,3 \cdot 10^9$

$$\overline{N(\text{Kr}^*)} = (12,3 \pm 2,9) \cdot 10^9 \text{ cm}^{-3}$$

Tableau 5

$$P_{\text{Kr}} = 171 \text{ mT}$$

$$J = 13 \text{ mA}$$

$$T = 90 \text{ K}$$

$\lambda_{\text{A}}^{\circ}$	Λ_{L}	$\Delta\Lambda_{\text{L}}$	$k_{0\ell}$	$\Delta(k_{0\ell})$	$N(\text{Kr}^*)$ at/cm ⁻³	$\Delta N(\text{Kr}^*)$ at/cm ⁻³
4 273	0,070	0,002	0,100	0,003	13,3 10^9	0,4 10^9
4 319	0,108	0,005	0,164	0,009	12,4 10^9	0,7 10^9
4 362	0,040	0,003	0,060	0,005	11,9 10^9	1 10^9
5 570	0,092	0,006	0,140	0,010	12,6 10^9	1 10^9
7 694	0,222	0,010	0,380	0,020	4,8 10^9	0,3 10^9

$$\overline{N(\text{Kr}^*)} = (12,6 \pm 0,9) 10^9 \text{ cm}^{-3}$$

Tableau 6

$$P_{\text{Kr}} = 120 \text{ mT}$$

$$J = 12,5 \text{ mA}$$

$$T = 90 \text{ K}$$

$\lambda_{\text{A}}^{\circ}$	Λ_{L}	$\Delta\Lambda_{\text{L}}$	$k_{0\ell}$	$\Delta(k_{0\ell})$	$N(\text{Kr}^*)$ at/cm ⁻³	$\Delta N(\text{Kr}^*)$ at/cm ⁻³
4 319	0,103	0,005	0,166	0,010	11,7 10^9	0,8 10^9
5 570	0,065	0,002	0,093	0,003	7,6 10^9	0,3 10^9
7 694	0,174	0,012	0,290	0,020	3,8 10^9	0,3 10^9

$$\overline{N(\text{Kr}^*)} = (9,7 \pm 2,1) 10^9 \text{ cm}^{-3}$$

Tableau 7

$$P_{Kr} = 75 \text{ mT}$$

$$j = 14 \text{ mA}$$

$$T = 90 \text{ K}$$

λ_A°	A_L	ΔA_L	$k_0 \ell$	$\Delta(k_0 \ell)$	$N(Kr^*)$ at/cm ⁻³	$\Delta N(Kr^*)$ at/cm ⁻³
4 319	0,093	0,004	0,139	0,006	10,6 10 ⁹	0,5 10 ⁹
5 570	0,054	0,002	0,077	0,003	7,1 10 ⁹	0,3 10 ⁹
7 694	0,159	0,010	0,258	0,020	3,3 10 ⁹	0,3 10 ⁹

$$\overline{N(Kr^*)} = (8,9 \pm 1,8) 10^9 \text{ cm}^{-3}$$

Tableau 8

$$P_{Kr} = 710 \text{ mT} \quad , \quad P_{Xe} = 25 \text{ mT} \quad , \quad j = 7 \text{ mA} \quad , \quad T = 300 \text{ K}$$

λ_A°	A_L	ΔA_L	$k_0 \ell$	$\Delta(k_0 \ell)$	$N(Kr^*)$ cm ⁻³	$\Delta N(Kr^*)$ cm ⁻³
4 273	0,084	0,003	0,124	0,005	30,4 10 ⁹	1,3 10 ⁹
4 319	0,097	0,006	0,146	0,010	20,4 10 ⁹	1,4 10 ⁹
5 570	0,103	0,005	0,156	0,009	25,4 10 ⁹	1,5 10 ⁹
7 694	0,481	0,022	1,060	0,084	24,7 10 ⁹	2,0 10 ⁹

$$\overline{N(Kr^*)} = (25,2 \pm 5,2) 10^9 \text{ cm}^{-3}$$

Tableau 9

$P_{Kr} = 712 \text{ mT}$, $P_{Xe} = 30 \text{ mT}$, $J = 7 \text{ mA}$, $T = 300 \text{ K}$

λ_A°	A_L	ΔA_L	$k_{0\ell}$	$\Delta(k_{0\ell})$	$N(Kr^*)$ cm^{-3}	$\Delta N(Kr^*)$ cm^{-3}
4 273	0,111	0,005	0,170	0,008	41 10^9	2 10^9
4 319	0,140	0,007	0,221	0,014	30 10^9	2 10^9
5 570	0,114	0,006	0,175	0,011	29 10^9	2 10^9
7 694	0,494	0,021	1,110	0,09	26 10^9	2 10^9

$$\overline{N(Kr^*)} = (28,3 \pm 2,3) 10^9 \text{ cm}^{-3}$$

Tableau 10

$P_{Kr} = 770 \text{ mT}$, $P_{Xe} = 50 \text{ mT}$, $J = 9 \text{ mA}$, $T = 300 \text{ K}$

λ_A°	A_L	ΔA_L	$k_{0\ell}$	$\Delta(k_{0\ell})$	$N(Kr^*)$ cm^{-3}	$\Delta N(Kr^*)$ cm^{-3}
4 273	0,026	0,002	0,037	0,003	8,3 10^9	0,7 10^9
4 319	0,039	0,002	0,056	0,003	8 10^9	0,4 10^9
5 570	0,034	0,002	0,049	0,003	8 10^9	0,5 10^9
7 694	0,342	0,016	0,640	0,040	8,9 10^9	0,6 10^9

$$\overline{N(Kr^*)} = (8,3 \pm 0,6) 10^9 \text{ cm}^{-3}$$

Tableau 11

3) Section efficace Q de transfert.

Le tableau 12 présente les valeurs de la population du niveau $6p[3/2]_1$, due au transfert, que nous avons mesurées dans différentes conditions expérimentales sur la raie à $3,36 \mu\text{m}$ dont la probabilité de transition calculée est : $0,5 \cdot 10^6 \text{ s}^{-1}$ [] (seule valeur disponible).

a) Mesure de Q à T = 90 K :

A température fixée et avec une pression de xénon correspondant à la pression de vapeur saturante à cette température (55 mT) nous avons fait des mesures de population pour différentes pressions de krypton à l'intérieur du tube à décharge. Les valeurs de la section efficace obtenues sont données dans le Tableau 13.

La valeur moyenne de la section efficace de transfert pour T = 90 K est :

$$Q = (5,4 \pm 1,5) \cdot 10^{-16} \text{ cm}^2 .$$

L'écart entre cette valeur moyenne et les diverses valeurs de la section efficace est inférieur à l'incertitude estimée. Nous pouvons donc espérer avoir tenu compte des erreurs sur les différentes probabilités de transition utilisées et sur la durée de vie du niveau $6p[3/2]_1$ du xénon. Toutefois le résultat final de nos mesures dépend de la probabilité de transition de la raie à $3,36 \mu\text{m}$ et une détermination expérimentale précise de cette probabilité de transition absolue pourrait amener une correction de la valeur de la section efficace.

\bar{J} (mA)	P_{Kr} (mT)	P_{Xe} (mT)	T (K)	$k\ell$	$\Delta(k\ell)$	$N(Xe^*)$ cm^{-3}	$\Delta N(Xe^*)$ cm^{-3}
12	245	55	100	$4,68 \cdot 10^6$	$0,46 \cdot 10^6$	$2,9 \cdot 10^7$	$0,3 \cdot 10^7$
13	225	55	100	$5,47 \cdot 10^6$	$0,56 \cdot 10^6$	$3,4 \cdot 10^7$	$0,2 \cdot 10^7$
13	171	55	100	$5,15 \cdot 10^6$	$0,50 \cdot 10^6$	$3,2 \cdot 10^7$	$0,3 \cdot 10^7$
12,5	120	55	100	$3,35 \cdot 10^6$	$0,29 \cdot 10^6$	$2,1 \cdot 10^7$	$0,2 \cdot 10^7$
14	75	55	100	$3,38 \cdot 10^6$	$0,35 \cdot 10^6$	$2,1 \cdot 10^7$	$0,2 \cdot 10^7$
7	710	25	300	$3,35 \cdot 10^6$	$0,78 \cdot 10^6$	$2,1 \cdot 10^7$	$0,5 \cdot 10^7$
7	712	30	300	$4,83 \cdot 10^6$	$1,02 \cdot 10^6$	$3,0 \cdot 10^7$	$0,6 \cdot 10^7$
9	770	50	300	$3,21 \cdot 10^6$	$0,87 \cdot 10^6$	$2,0 \cdot 10^7$	$0,5 \cdot 10^7$

Tableau 12

P_{Kr} mT	$\overline{N(Kr^*)}$ cm^{-3}	$\Delta N(Kr^*)$ cm^{-3}	$N(Xe^*)$ cm^{-3}	$\Delta N(Xe^*)$ cm^{-3}	Q cm^2	ΔQ cm^2
245	$11,7 \cdot 10^9$	$2,3 \cdot 10^9$	$2,9 \cdot 10^7$	$0,3 \cdot 10^7$	$5,5 \cdot 10^{-16}$	$1,6 \cdot 10^{-16}$
225	$12,3 \cdot 10^9$	$2,9 \cdot 10^9$	$3,4 \cdot 10^7$	$0,2 \cdot 10^7$	$6,1 \cdot 10^{-16}$	$1,7 \cdot 10^{-16}$
171	$12,6 \cdot 10^9$	$0,9 \cdot 10^9$	$3,2 \cdot 10^7$	$0,3 \cdot 10^7$	$5,6 \cdot 10^{-16}$	$0,9 \cdot 10^{-16}$
120	$9,7 \cdot 10^9$	$2,1 \cdot 10^9$	$2,1 \cdot 10^7$	$0,2 \cdot 10^7$	$4,7 \cdot 10^{-16}$	$1,4 \cdot 10^{-16}$
75	$8,9 \cdot 10^9$	$1,8 \cdot 10^9$	$2,1 \cdot 10^7$	$0,2 \cdot 10^7$	$5,2 \cdot 10^{-16}$	$1,5 \cdot 10^{-16}$

$T = 100 \text{ K}$ $P_{Xe} = 55 \text{ mT}$ $Q = (5,4 \pm 1,4) \cdot 10^{-16} \text{ cm}^2$

Tableau 13

b) Mesure de Q à 300 K .

Bien que les mesures soient moins précises à 300 K nous les avons effectuées car Q peut dépendre de la température.

A 300 K la largeur à mi-hauteur de la gaussienne associée aux populations normales du niveau $6p[3/2]_1$ du xénon est plus grande que celle obtenue à 100 K (respectivement 3,2 mK et 1,87 mK). Lors de l'extraction du plateau selon la méthode décrite précédemment, nous sous-estimons systématiquement la valeur de la population transférée. Pour estimer la correction à faire, nous avons refait le dépouillement en partant de la largeur de la gaussienne aux trois-quarts de sa hauteur. Les nouvelles valeurs des populations transférées ainsi obtenues sont supérieures aux précédentes mais l'imprécision est accrue . Nous avons donc estimé la correction à la moitié de la différence, ce qui revient à prendre la moyenne des deux valeurs.

Les valeurs obtenues sont présentées dans le tableau suivant :

P_{Kr} mT	P_{Xe} mT	$\overline{N(Kr^*)}$ cm^{-3}	$\overline{\Delta N(Kr^*)}$ cm^{-3}	$N(Xe^*)$ cm^{-3}	$\Delta N(Xe^*)$ cm^{-3}	Q cm^2	ΔQ cm^2
710	25	$25,2 \cdot 10^9$	$5,2 \cdot 10^9$	$2,3 \cdot 10^7$	$0,5 \cdot 10^7$	$8,5 \cdot 10^{-16}$	$3,4 \cdot 10^{-16}$
712	30	$28,3 \cdot 10^9$	$2,3 \cdot 10^9$	$3,5 \cdot 10^7$	$0,6 \cdot 10^7$	$9,6 \cdot 10^{-16}$	$2,3 \cdot 10^{-16}$
770	50	$8,3 \cdot 10^9$	$0,6 \cdot 10^9$	$2,1 \cdot 10^7$	$0,5 \cdot 10^7$	$11,7 \cdot 10^{-16}$	$3,4 \cdot 10^{-16}$

La valeur moyenne de la section efficace de transfert à $T = 300$ K est :

$$Q = (10 \pm 4) \cdot 10^{-16} \text{ cm}^2$$

Malgré les incertitudes nous avons obtenu un ordre de grandeur de la section efficace à 300 K . Cette valeur est pratiquement le double de celle obtenue à basse température (100 K) et le recoupement des barres d'erreur est très petit. Nous pensons donc avoir mis en évidence une augmentation de la section efficace avec la température. Cette variation de Q avec la température paraît d'autant plus probable qu'un changement de la valeur de la probabilité de transition de la raie à $3,36 \mu\text{m}$ ne modifierait pas le rapport de ces sections efficaces. Néanmoins cette variation doit être vérifiée par des mesures plus nombreuses et plus précises. De même, des mesures à d'autres températures sont nécessaires, ainsi que des études précises d'autres transferts pour définir cette variation.

CONCLUSION

Nous avons étudié le transfert entre le niveau $5s[3/2]_2$ du krypton et le niveau $6p[3/2]_1$ du xénon au sein d'un mélange excité par décharge électrique. Pour mesurer la section efficace de ce transfert nous n'avons eu recours ni à des bilans de population compliqués et incomplètement connus, ni à l'excitation optique. Notre méthode, plus directe et plus sûre, est basée sur la sélection de la population due au transfert grâce à son profil spectral.

Différentes conditions favorables ont rendu cette sélection possible. D'une part, nous pouvons obtenir l'inversion de population sur la transition du xénon considérée et donc réduire et même, dans certains cas, annuler la différence des populations normales des niveaux de cette transition. D'autre part, nous avons pu travailler à des pressions assez basses pour qu'il y ait beaucoup moins d'un choc élastique par durée de vie, la forme du profil est ainsi peu altérée. La valeur obtenue pour la section efficace à 90 K est relativement élevée vu l'importance du défaut d'énergie ; ceci permet de comprendre pourquoi nous obtenons des profils de transfert avec un bon rapport signal sur bruit. Nous avons utilisé l'excitation optique dans la décharge lors d'une

expérience de dépeuplement du niveau métastable du krypton, mais cela a amené de grosses variations des populations normales de plusieurs niveaux. Dans le mélange krypton-xénon d'autres transferts mis en évidence par la même méthode présentent des caractéristiques comparables à celui que nous avons étudié. La mesure de leur section efficace reste à faire mais chaque cas particulier demande une adaptation de la méthode. L'excitation optique pourra éventuellement être utilisée.

Le rôle des transferts dans le peuplement des niveaux peut être masqué dans une décharge. La connaissance de la section efficace thermique Q_T permet d'éviter des erreurs importantes dans les bilans d'excitation. Nous ne disposons actuellement d'aucun renseignement général sur la façon dont la section efficace dépend de la vitesse relative. La mesure de Q_T à plusieurs températures est susceptible de fournir des indications fort utiles sur $Q(v_r)$ quand la théorie aura progressé. Bien que les conditions soient peu favorables, la mesure que nous avons effectuée à 300 K montre que, dans le domaine de température 100K - 300K, la section efficace thermique est une fonction croissante de la température. $Q(v_r)$ doit être également une fonction croissante de v_r pour les vitesses correspondantes.

La méthode que nous avons utilisée n'est pas générale. Malgré les réserves que nous avons faites à ce sujet, nous pensons que l'excitation par laser doit permettre une large extension des mesures de sections efficaces de transfert et de quenching.

REFERENCES

- [1] J. BROCHARD et R. VETTER, J. Phys. 28, 250-4 (1967)
- [2] J. BROCHARD et R. VETTER, J. Phys. B : Atom. Molec. Phys. 7, n° 3
(1974)
- [3] D. REYMANN, Thèse de 3ème cycle, ORSAY (1973)
- [4] M. HUGON, Thèse de 3ème cycle, ORSAY (1975)
- [5] J. BROCHARD, R. VETTER, M. AYMAR et M. HUGON
J. Phys. B : Atom. Molec. Phys. 8, n° 2 (1975)
- [6] R. VETTER, R. DAMASCHINI, J. CAHEN et J. BROCHARD
J. Phys. B : Atom. Molec. Phys. 8, n° 12 (1975)
- [7] J. FRANCK, Z. f. Phys. 9, 259 (1922)
- [8] J. H. PARKS et A. JAVAN, The Physical Review 139, A1351 (1965)
- [9] R. W. WOOD, Proc. Roy. Soc. 106, 679 (1924),
Phil. Mag. 50, 775 (1927)
- [10] G. CARIO et J. FRANCK, Z. f. Phys. 17, 202 (1923)
- [11] A. C. G. MITCHELL et M. W. ZEMANSKY
Resonance Radiation and Excited atoms, CAMBRIDGE U. P. (1934)
- [12] J. BROCHARD et R. VETTER, à paraître
- [13] B. CHERON, G. CREMER, D. LECLER et L. SAINTOUT
Le Journal de Physique-Lettres 35, 247 (1974)
- [14] M. L. SOSINSKII, E. N. MOROZOV et V. T. SELYAVSKII
Optics Spectro. 30, 517-8 (1970)
- [15] M. CZAJKOWSKI, D. A. MCGILLIS et L. KRAUSE
Canadian Journal of Physics 44, 91 (1966)

- [16] G. D. CHAPMAN et L. KRAUSE
Canadian Journal of Physics 44, 753 (1966)
- [17] M. CZAJKOWSKII, D. A. MCGILLIS et L. KRAUSE
Canadian Journal of Physics 44, 741 (1966)
- [18] J. P. GRANDIN, D. HEMNECART, X. HUSSON, D. LECLER, J. F. VIENNE ;
M. BARRAT-RAMBOSSON, Le Journal de Physique 36, 787 (1975)
- [19] J. DESCHAMPS et A. RICARD, Le Journal de Physique 34, C2-123 (1973)
- [20] O. P. BOTCHKOVA et L. I. KOUZNETSOVA
Vestn. Leningrad, Univ. Fiz. Khim., n° 2 p. 43-6 (1972)
- [21] M. AYMAR, Thèse, PARIS-ORSAY (1973)
- [22] T. HOLSTEIN, Phys. Rev. 72, 12 (1947) ; Phys. Rev. 83, 6 (1951)
- [23] R. VETTER et D. REYMANN
J. Phys. B : Atom. Molec. Phys. 7, 323 (1974)
- [24] R. VETTER, Thèse, PARIS-ORSAY (1970)
- [25] M. AYMAR, Physica 57, 178 (1972)
- [26] R. LADENBURG et F. REICHE, Ann. de Phys. 42, 181 (1913)
- [27] M. H. MILLER, R. A. ROIG et R. D. BENGSTON,
Phys. Rev. A 8, 480 (1973)
- [28] P. W. MURPHY, J. Opt. Soc. Am. 58, 1200 (1968)
- [29] A. PERY-THORNE et J. E. CHAMBERLAIN,
Proc. of the Phys. Soc. 82, 133 (1963)

Avant de clore cet exposé, je tiens à remercier
M. le Professeur P. JACQUINOT et M. S. FENEUILLE qui m'ont permis
d'effectuer ce travail au Laboratoire Aimé Cotton.

Monsieur le Professeur J. BROCHARD m'a dirigée dans
cette étude. L'intérêt qu'il a porté à mon travail et les précieux
conseils qu'il m'a donnés m'ont beaucoup aidée. Qu'il veuille bien
trouver ici l'expression de ma reconnaissance.

La rédaction définitive de cet exposé doit beaucoup aux
suggestions et aux critiques constructives de M. R. DAMASCHINI.
J'ai trouvé auprès de lui, ainsi qu'auprès de M. R. VETTER, un
soutien effectif sur le plan expérimental et une aide précieuse
pour la compréhension des phénomènes exposés. Je leur en suis
profondément reconnaissante.

Je voudrais aussi exprimer ma gratitude à tous les
chercheurs et à tous les techniciens du laboratoire pour la gentil-
lesse avec laquelle ils m'ont toujours aidée. Je remercie tout
particulièrement MM. M. OPPENHEIMER pour la verrerie, R. LEROUX
pour l'électronique. Mes remerciements vont également à
Mme G. FONTAINE qui a assuré la dactylographie de ce mémoire et à
M. M. REY qui l'a illustré.

Enfin j'adresse mes sincères remerciements à MM. P. RIGNY
et M. CLERC du C. E. A. qui m'ont laissée libre d'aménager mes
horaires pour terminer cette rédaction.