

☆ ☆ CHAPITRE IV ☆ ☆

"PRODUCTION ET DETECTION D'ATOMES ALCALINS TRES EXCITES"

Ce chapitre est destiné à servir d'introduction à la partie expérimentale de ce mémoire. Il regroupe la description des différentes techniques expérimentales communes à toutes les expériences que nous allons exposer ultérieurement. Nous traiterons d'abord de la méthode de population des niveaux de Rydberg à partir d'atomes dans l'état fondamental, puis des méthodes de détection et de mesure de la population de ces niveaux excités, en distinguant les méthodes utilisées sur les cellules et celles utilisées sur jet atomique.

A. EXCITATION DES NIVEAUX DE RYDBERG DES ALCALINS

1. GENERALITES

Les figures 31 et 32 montrent le diagramme des niveaux d'énergie des deux alcalins que nous étudierons ici : le sodium et le césium. Pour notre problème particulier, le paramètre le plus important de ces diagrammes est l'énergie d'ionisation E_I , puisque c'est cette énergie (ou légèrement moins) qu'il faudra fournir aux atomes pour les porter dans un état de Rydberg.

E_I vaut respectivement ⁽⁵⁸⁾ :

- pour le sodium $E_I = 41\,449.65 \text{ cm}^{-1} = 5,14 \text{ eV}$ (correspondant à une longueur d'onde de 2413 \AA) (IV.1)
- pour le césium $E_I = 31\,406.71 \text{ cm}^{-1} = 3,90 \text{ eV}$ (correspondant à une longueur d'onde de 3184 \AA) (IV.2)

Les niveaux de Rydberg auxquels nous nous intéressons sont en fait à quelques centaines de cm^{-1} au-dessous de cette limite (quelques millièmes de l'énergie d'ionisation). Nous désirons de plus pouvoir exciter efficacement un seul niveau de Rydberg à la fois, tout en étant capables d'explorer une série de niveaux sur un grand intervalle de valeurs de n . Il faut donc une excitation qui soit intense, de faible largeur spectrale, et balayable en longueur d'onde : les lasers à colorants fonctionnant en impulsion correspondent à ces spécifications, mais jusqu'à présent, ils ne fonctionnent que dans le spectre visible et dans le proche ultra-violet et infrarouge, et pas aux lon-

guez d'ondes données en (IV.1) et (IV.2). Pour exciter les niveaux de Rydberg des alcalins, il est donc nécessaire d'apporter l'énergie d'excitation au moyen de deux photons optiques :

- 1) Soit par absorption simultanée de deux photons (¹¹⁷)(⁹⁴) , comme dans les expériences de spectroscopie à deux photons sans effet Doppler. Mais à cause de l'absence de niveau intermédiaire résonnant, l'efficacité du pompage est faible. On peuple ainsi les séries S ou D à partir du fondamental.
- 2) Soit en "additionnant" dans un cristal doubleur deux photons optiques pour créer un photon ultra-violet. On peuple ainsi la série P à partir du fondamental (⁸⁹).
- 3) Soit enfin en utilisant deux lasers accordés sur deux transitions successives (excitation en échelon). On bénéficie ainsi du caractère résonnant des deux processus; l'efficacité d'un tel pompage est donc très grande. Malheureusement, elle ne permet de peupler que les séries S ou D (on peut imaginer des excitations à 3 échelons ou plus pour exciter les autres séries (¹¹⁸)). L'adjonction d'un faible champ électrique au moment de l'excitation permet aussi de peupler les niveaux P en le mélangeant avec les fonctions d'onde des niveaux S ou D.

Nous avons utilisé la méthode n° 3 pour toutes les expériences sur le sodium et la méthode n° 2 pour étudier les niveaux P du césium.

Dans le cas du sodium, le premier échelon est constitué par l'une des deux transitions de résonance $3S \rightarrow 3P_{1/2}$ (5896 Å) ou $3S \rightarrow 3P_{3/2}$ (5890 Å). Comme la force d'oscillateur sur cette transition est très grande, il suffit d'une faible puissance (inférieure à quelques dizaines de watts) pour la saturer pendant la durée de l'impulsion. Le deuxième échelon permet de peupler les états proches de la limite d'ionisation avec une excitation dans le bleu lointain. Le tableau suivant donne les longueurs d'onde dans l'air du deuxième échelon nécessaire pour atteindre un niveau donné $|n\ell\rangle$ à partir par exemple du $3P_{1/2}$.

$n\ell$	9D	15D	23S	22D	24S	39S	38D	40S	$n = \infty$
$\lambda_{3P_{1/2} \rightarrow n\ell}$ (Å)	4321,0	4165,2	4120,5	4119,3	4117,1	4094,1	4093,8	4093,4	4081,2

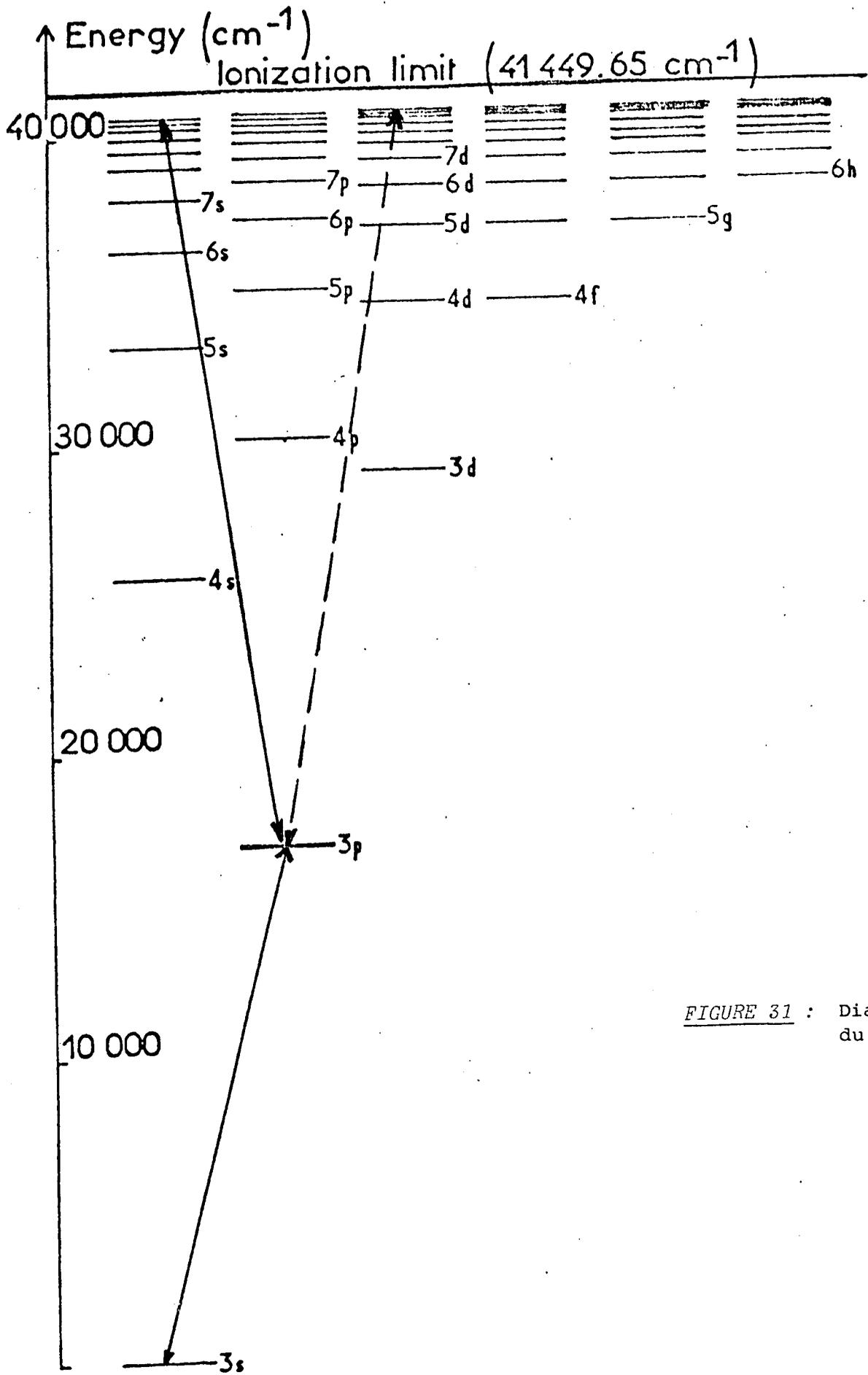


FIGURE 31 : Diagramme d'énergie du sodium

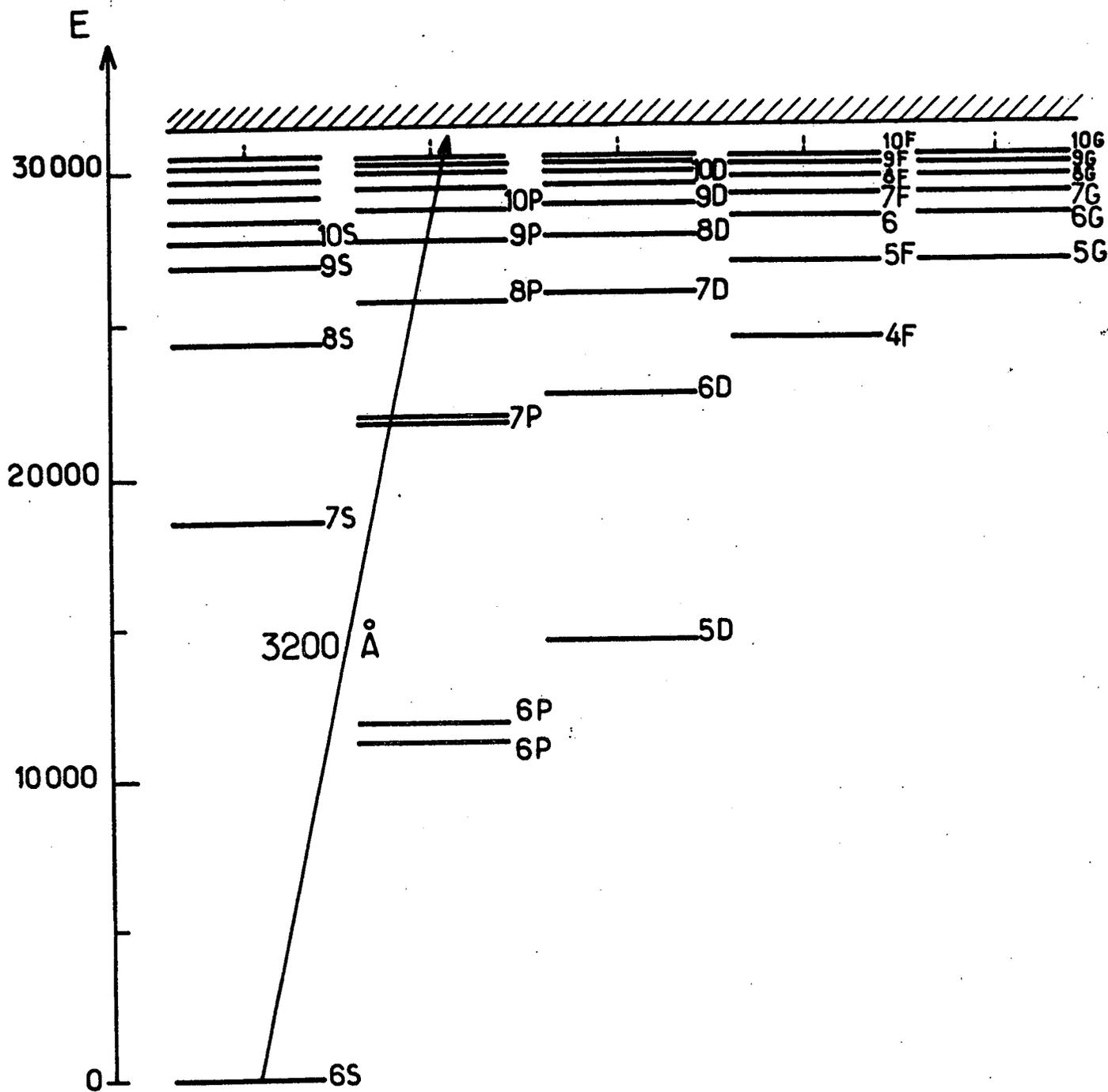


Fig. 32 - Diagramme d'énergie du Césium

L'efficacité du pompage, donc la population du niveau excité à puissance laser constante, décroît en $1/\nu^3$, où ν est le nombre quantique effectif du niveau d'arrivée. D'autre part, les niveaux se resserrent lorsque n augmente : la séparation (qui varie en $1/\nu^3$ aussi) entre les niveaux 10D et 11D est de 35 Å; elle n'est plus que de 0,7 Å entre les niveaux 39S et 40S.

Les mesures spectroscopiques ⁽⁵⁸⁾(³⁶) effectuées sur les niveaux moyennement excités du sodium nous permettent de connaître approximativement les défauts quantiques des niveaux de faible moment cinétique. Ils sont donnés dans le tableau suivant :

ℓ	S	P	D
δ_ℓ	1,347	0,855	0,014

Cette distribution particulière des défauts quantiques entraîne une succession de niveaux d'énergie aux alentours de $n = n_0$ qui a l'allure de la figure 33.

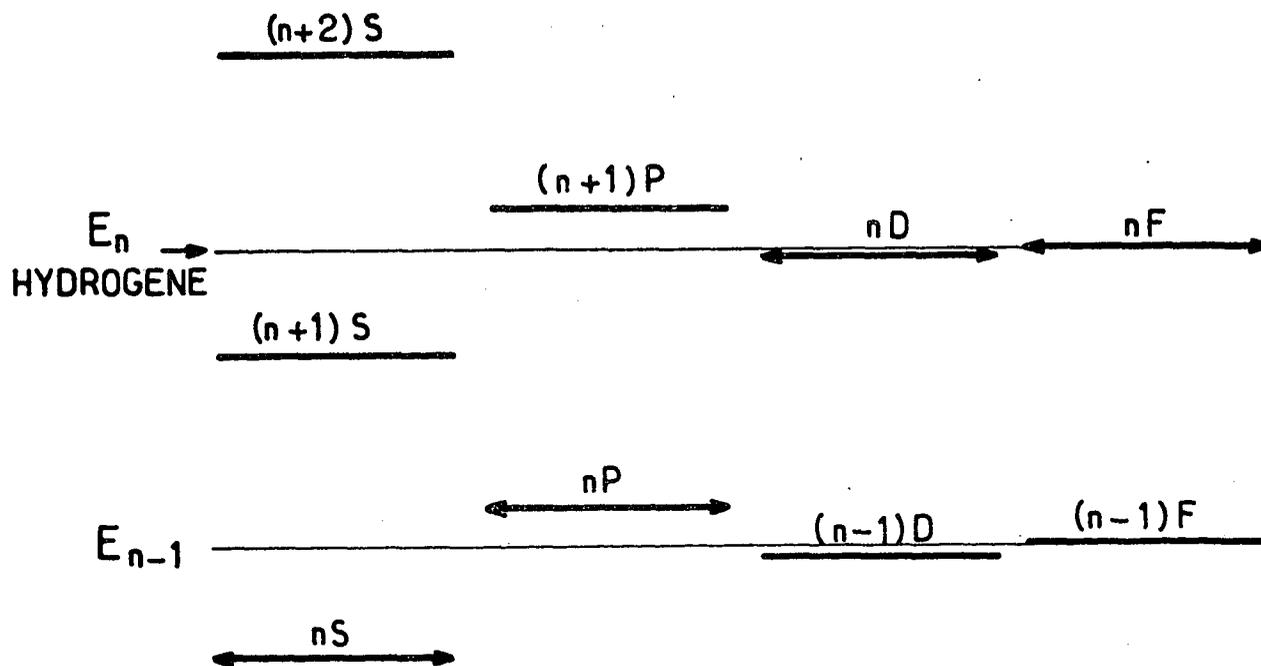


Fig - 33

Les niveaux P, comme nous l'avons maintes fois signalé, se trouvent très proches du milieu des niveaux nS et (n+1)S. Lorsqu'on balaie continûment la fréquence du laser, on observe des séquences de niveaux excités du type $nS \rightarrow (n-1)D \rightarrow (n+1)S \rightarrow nD \dots$, l'intervalle nS-(n-1)D étant à peu près le tiers de l'intervalle entre niveaux consécutifs de la même série.

Dans le cas du césium, nous avons excité directement les niveaux P en doublant l'émission d'un laser à colorant dans le rouge, vers 6400 Å dans un cristal d'ADP. Les défauts quantiques du césium sont donnés par le tableau suivant :

λ	S	P	D	F
δ_λ	4,05	3,57	2,47	0,03

2. DESCRIPTION DES LASERS

Pour induire ces transitions, nous avons utilisé 2 lasers à colorants pompés par le même laser à azote (voir figure 34). Le laser à azote (MOLECTRON UV 1000) donne des impulsions de 10 ns de durée et de 10 mJ d'énergie à un taux de répétition voisin de 10 Hz. Les lasers à colorants ont été montés au laboratoire selon la disposition préconisée par HÄNSCH (119) et maintenant bien connue : la cavité est fermée à une extrémité par une lame faiblement réfléchissante, à l'autre extrémité par un réseau et comprend un système afocal chargé d'étendre le faisceau et, en illuminant un plus grand nombre de traits du réseau, de diminuer la largeur de raie d'émission du laser.

Dans le cas de l'excitation en échelon du sodium, le laser à colorant fonctionnant dans le jaune (colorant : Rhodamine 6G) est pompé par une faible partie du faisceau du laser à azote (10%) et a une puissance crête inférieure au kW, ce qui est suffisant pour saturer la transition 3S-3P pendant la durée de l'impulsion. Le laser à colorant assurant le second échelon dans le bleu (colorants : Coumarine 120 pour les niveaux $n = 9$ et 10 ; POPOP pour $n = 11, 12, 13$; Bis-MSB pour $n = 14 - 19$; DPS pour $n \geq 20$; les deux premiers sont en solution dans l'éthanol, les deux derniers dans le dioxane) doit avoir

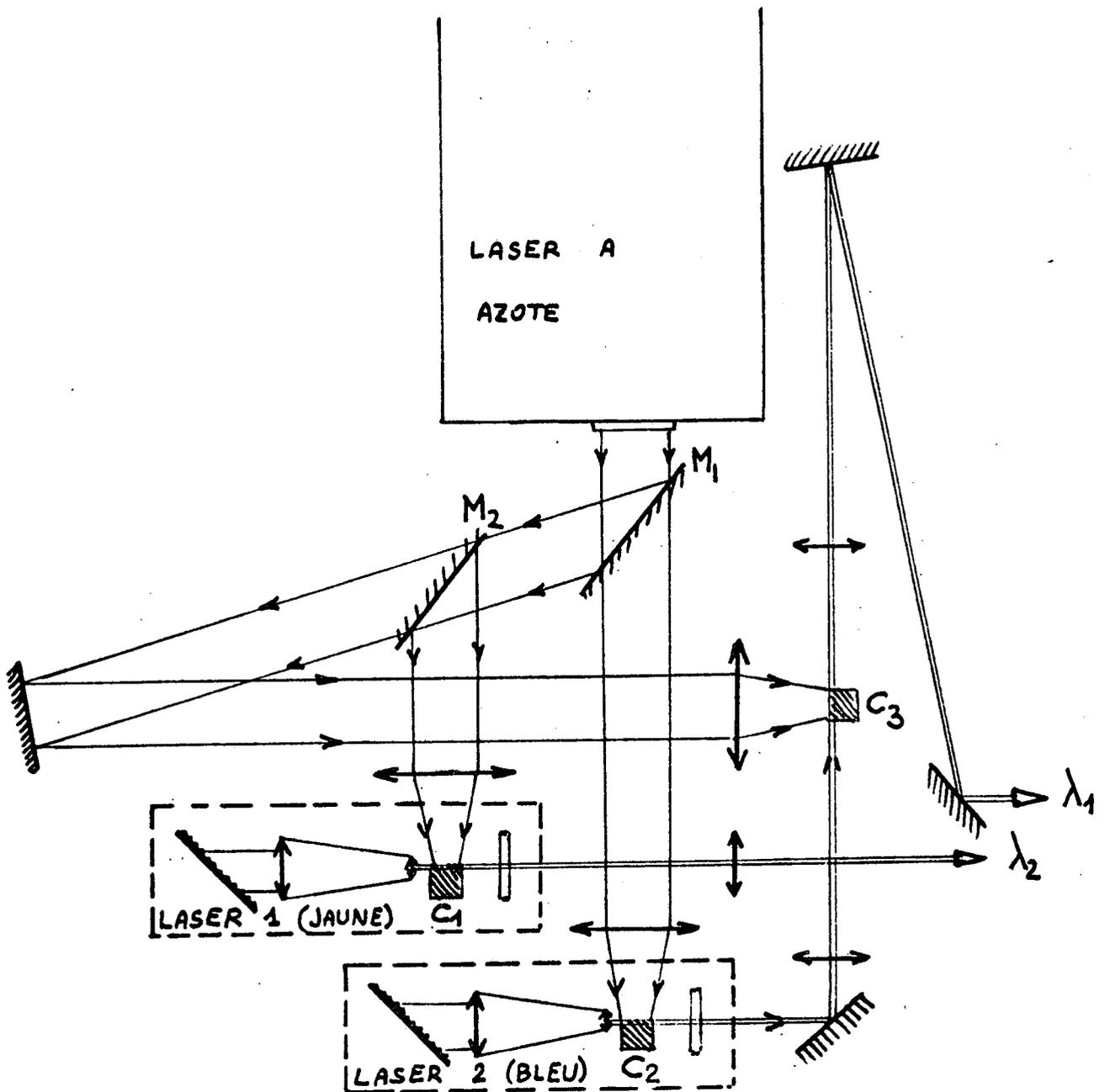


FIGURE 34 : Schéma des lasers

- M_1 M_2 : miroirs UV plans à bord rectiligne
(dévient une "tranche" inférieure du faisceau du laser à azote)
- C_1 C_2 C_3 : cellules à colorant (à agitation)

au contraire une puissance aussi grande que possible puisque, nous le savons, la force d'oscillateur $3P \rightarrow n\ell$ décroît proportionnellement à $1/v^3$. L'impulsion issue du laser bleu est amplifiée à l'intérieur d'une deuxième cellule à colorant pompée par une partie du faisceau ultra-violet du laser à azote. On obtient ainsi des puissances crête de l'ordre de plusieurs dizaines de kW sur une largeur de raie de l'ordre de $0,2 \text{ \AA}$ ($0,5 \text{ cm}^{-1}$ à 4000 \AA). Ceci permet de saturer les transitions $3P \rightarrow nS$ ou nD jusqu'à $n \approx 20$ et de peupler efficacement les niveaux dans toute la gamme qui nous a intéressé ici (1% des atomes au moins sont portés dans l'état de Rydberg pour $n \approx 40$). De plus, le faisceau du laser bleu, une fois amplifié, comporte une ligne à retard de longueur de l'ordre du mètre (3 ns) pour que l'impulsion bleue arrive sur les atomes après leur excitation dans le niveau $3P$ par l'impulsion jaune.

3. MISE A RESONANCE DES LASERS

Pour peupler sans ambiguïté un niveau de Rydberg choisi à l'avance, nous utilisons une technique en deux étapes :

- La lumière du laser bleu est envoyée sur la fente d'entrée d'un monochromateur à haute résolution (JOBIN YVON THR2) étalonné de manière absolue à $\pm 0,1 \text{ \AA}$ près. On ajuste alors la longueur d'onde du laser à la valeur prévue pour la transition $|3P_J\rangle \rightarrow |n\ell\rangle$, calculée d'après les tables de niveaux d'énergie (58).
- On observe alors un signal S_0 sensible à la population des niveaux excités (fluorescence dans le cas des expériences de battement quantique, signal d'ionisation par champ pour les expériences suivantes). Il suffit alors d'une très faible correction de la fréquence du laser pour voir apparaître le signal S_0 . Cette procédure n'introduit aucune ambiguïté lorsque les niveaux de Rydberg sont nettement séparés ($n \lesssim 35$). Elle est plus délicate au-delà. Il est possible alors, pour identifier un niveau donné, de balayer continûment la longueur d'onde dans le sens croissant et de compter les niveaux rencontrés jusqu'à un niveau bien isolé donné, identifiable sans ambiguïté. Signalons aussi que la forme du signal S permet bien souvent de déterminer s'il s'agit d'un niveau S ou d'un niveau D et donc de lever la plus grande partie de l'indétermination. Enfin, mais cette méthode n'est possible que dans les expériences sur jet atomique, on peut lever les derniers doutes sur l'identification d'un niveau de

n très élevé en essayant d'induire par une source extérieure de fréquence connue une transition entre états de Rydberg : la transition a lieu à une fréquence évidemment spécifique du niveau considéré et permet de confirmer ou d'infirmier des identifications.

La largeur spectrale médiocre de nos lasers à colorants permet d'exciter un seul niveau de Rydberg à la fois jusqu'à des valeurs de n de l'ordre de 45. La gamme $10 \leq n \leq 45$ nous ayant paru suffisante pour nos études spectroscopiques, nous n'avons pas cherché à affiner la largeur de raie en introduisant des éléments sélectifs dans la cavité.

4. DIMINUTION DE LA LARGEUR SPECTRALE DU LASER

Si une grande finesse de raie n'est pas nécessaire pour les expériences que nous avons effectuées sur le sodium, car ce n'est pas la résolution sur la fréquence laser qui limite la résolution de nos mesures spectroscopiques, elle est par contre absolument indispensable dans les expériences sur le césium. Comme nous le verrons dans le chapitre V, il était nécessaire de résoudre avec le laser la structure fine du niveau P excité (de l'ordre de 10 GHz pour $n \approx 30$).

L'affinement de la raie a été réalisé grâce au dispositif représenté sur la figure 35 : il s'agit d'une configuration dérivée de celle de LITTMANN et METCALF (120) : à la sortie du télescope, on dispose le réseau à incidence rasante. La cavité est ensuite fermée par un miroir. Ainsi, le nombre de traits du réseau illuminés par la tache laser est maximal et la largeur de raie minimale. L'ajustement en fréquence est assuré en tournant légèrement le miroir. On obtient des largeurs d'émission aussi fines que 1 GHz à 6400 Å (colorant utilisé : rhodamine B + crésyl violet), soit 2 GHz une fois doublé. La puissance disponible dans l'ultra-violet est de l'ordre de quelques centaines de Watts.

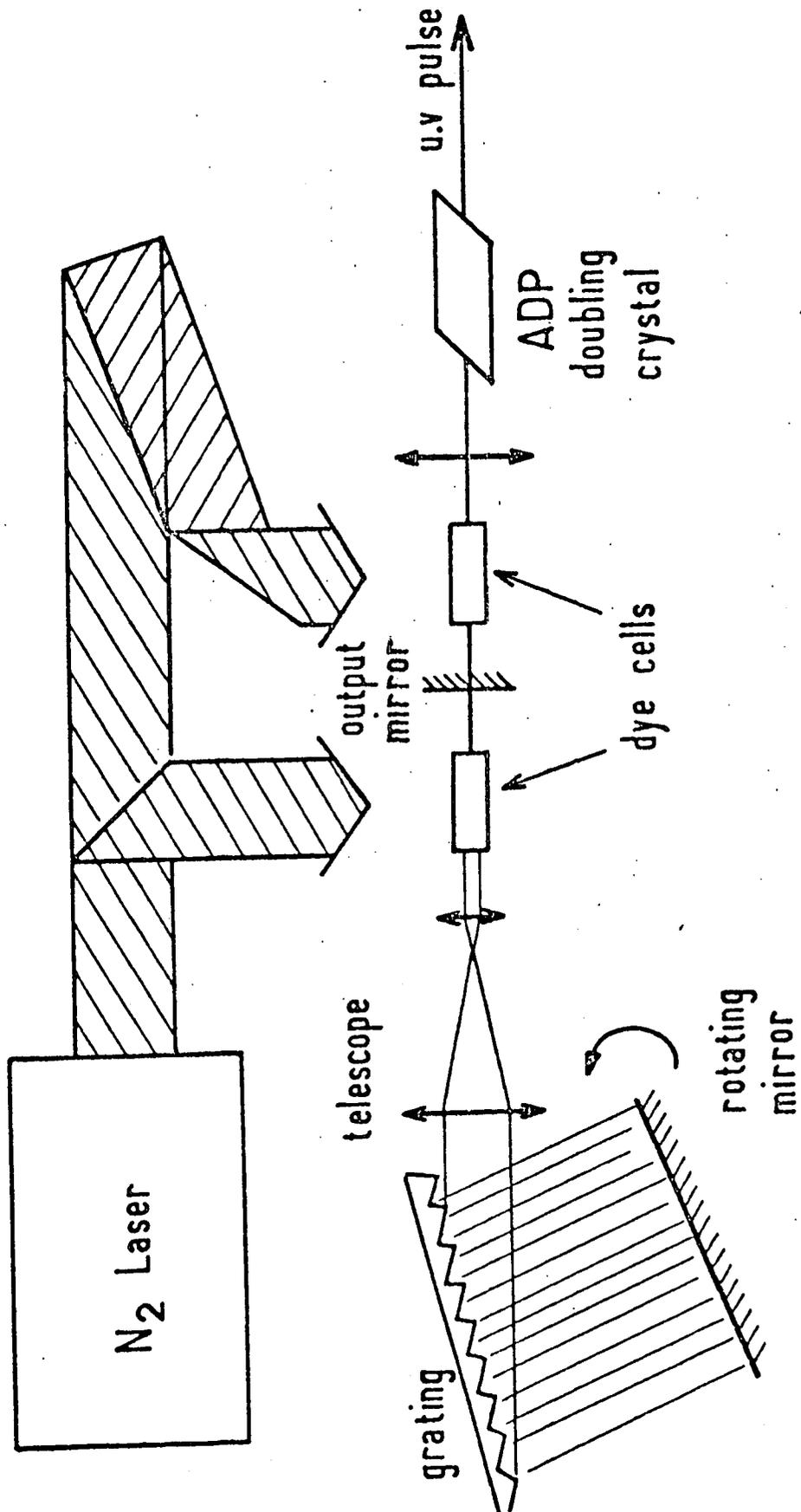


FIGURE 35

B. DETECTION DES ETATS DE RYDBERG EN CELLULE

Les expériences de battements quantiques réalisées sur les niveaux moyennement excités du sodium ($9 < n < 16$) ont été réalisées dans une cellule de verre (Corning 1720) remplie de sodium chauffé à environ 130° .

La méthode de détection la plus simple est alors la détection de la fluorescence de ces niveaux vers les niveaux peu excités. Les durées de vie (à $T = 0^\circ\text{K}$) des états D du sodium varient de 680 ns pour $n = 9$ à $3,8 \mu\text{s}$ pour $n = 16$. Cette technique ne présente pas de caractère particulier par rapport aux études de fluorescence des niveaux peu excités. Son avantage est sa grande simplicité, sa sélectivité (en utilisant une série de filtres ou un monochromateur pour isoler la fluorescence sur une transition donnée). Son inconvénient principal est son faible rendement : le nombre de photons détectés est très inférieur au nombre de photons émis par les atomes, à cause du rendement quantique du photomultiplicateur et de la limitation de l'angle solide de collection des photons.

Lorsque le nombre quantique principal du niveau peuplé augmente, le nombre d'atomes excités diminue et la durée de vie du niveau augmente, ce qui diminue fortement le nombre de photons arrivant dans un intervalle de temps donné, donc implique de longues périodes de moyennage.

Un autre problème crucial qui apparaît en cellule aux grandes valeurs de n est celui des collisions. A 130°C dans la cellule, la pression de vapeur de sodium est de l'ordre de $1,3 \times 10^{-6}$ Torr, ce qui donne une densité atomique de l'ordre de 3×10^{10} at/cm³. Si nous prenons comme limite supérieure de la section efficace de collision la section géométrique (pour des niveaux de n relativement peu élevé, cela donne un ordre de grandeur de la section efficace réelle), on obtient un libre parcours moyen de 30 cm pour $n = 10$, 4 cm pour $n = 20$, soit en prenant une vitesse thermique de 600 m/s, un temps de désexcitation par collision de l'ordre de 500 μs pour $n = 10$, 70 μs pour $n = 20$. Les effets de collision, à la pression choisie, commencent à affecter les signaux sur des niveaux de n supérieur à 20. Il est évidemment possible

de diminuer la pression dans la cellule, mais alors le nombre d'atomes excités par une impulsion laser devient dérisoirement faible.

Notons qu'il existe une méthode efficace et sensible de détection d'états de Rydberg de grande valeur de n en cellule. Il s'agit de la détection par modification de la charge d'espace (¹¹⁷). Mais elle ne permet pas de discriminer entre eux les différents états excités. Nous ne l'avons donc jamais utilisée.

C. DETECTION DES ETATS DE RYDBERG SUR UN JET ATOMIQUE

Si on veut étudier des états atomiques très excités, sans être gênés par les collisions, il est très pratique d'utiliser un jet atomique dans lequel tous les atomes se propagent dans la même direction, ce qui diminue la probabilité pour deux quelconques d'entre eux d'entrer en collision. Mais nous verrons dans la suite de ce paragraphe que l'utilisation d'un jet atomique apporte bien d'autres avantages.

1. DESCRIPTION DU JET ATOMIQUE

Les alcalins étant relativement volatils, il est facile de réaliser un jet de tels atomes.

■ Le four est une enceinte en acier inoxydable chauffée par des enroulements de thermocoax (voir figure 36). La partie supérieure du four comporte un trou fileté sur lequel on peut visser des diaphragmes de sortie de section circulaire et de diamètre variable (0,5 mm, 1 mm, 3 mm). Les enroulements et les points de fixation sont disposés de telle sorte que la partie supérieure du four et le diaphragme sont à une température supérieure de 50° environ à celle du réservoir de sodium. Celui-ci est rendu étanche par un joint de cuivre et comporte une grille qui limite les projections de sodium liquide au travers du diaphragme lors de l'ébullition à température élevée. Le four est entouré d'une jupe de cuivre refroidie par une circulation d'eau (qui refroidit aussi

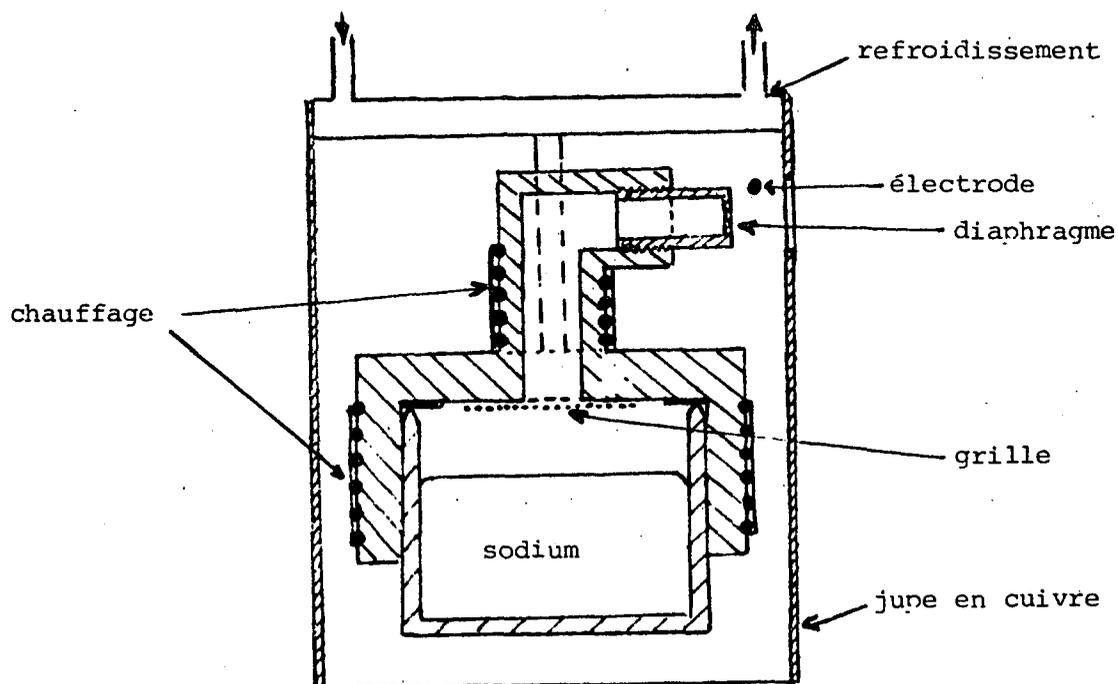


FIGURE 36

les points de fixation du four sur le flasque de l'enceinte à vide. Deux thermocouples permettent de contrôler la température du réservoir de sodium et du diaphragme et le courant dans les enroulements chauffants ($P_{\text{max}} \approx 45 \text{ W}$) est régulé pour maintenir ces températures constantes. Une électrode portée à un potentiel constant de 90 V est disposée à quelques millimètres au-dessus du jet à sa sortie du diaphragme pour dévier les éventuelles particules ionisées sortant du four et génératrices de champs électrostatiques parasites très perturbateurs pour les états de Rydberg. Un volet mobile situé sur le trajet du jet permet de l'interrompre le cas échéant.

La température d'utilisation du four a varié de 250°C à 400°C selon les expériences effectuées correspondant à des pressions de vapeur de sodium à l'intérieur du four s'étendant de $1,7 \times 10^{-3}$ Torr à $3,4 \times 10^{-1}$ Torr, c'est-à-dire une densité atomique variant de 3×10^{13} at/cm³ à 5×10^{15} at/cm³.

La collimation du jet, qui se propage dans un plan horizontal, est assurée de deux manières :

■ Par un diaphragme refroidi à l'azote liquide et placé à une dizaine de centimètres de la sortie du four, se présentant sous la forme d'une fente verticale.

■ Par l'excitation laser elle-même qui n'excite dans cette nappe d'atomes de sodium qu'une faible hauteur (de l'ordre du millimètre).

La collimation du jet d'atomes très excités est définie par la dimension du diaphragme de sortie du four d'une part, et par la largeur de la fente et la focalisation du laser d'autre part. Selon les expériences, elle a varié de quelques dizaines à quelques centaines.

Les différentes enceintes à vide que nous avons utilisées permettent au jet atomique de se propager sur environ 30 cm. Le vide y est réalisé par une pompe à diffusion d'huile Edwards de débit 135 ℓ/s , qui assure un vide limite de l'ordre de 10^{-6} Torr lorsque le four est chauffé à sa température d'utilisation, et quelques 10^{-7} Torr lorsque toutes les parois de l'enceinte à vide sont à la température ambiante. L'enceinte est en outre munie d'un vase Dewar rempli d'azote liquide qui refroidit des plaques de cuivre disposées autour du jet. Ce cryopompage supplémentaire assure un vide limite de 1×10^{-7} Torr ou mieux même lorsque le four est chaud. Précisons enfin que la pompe secondaire à diffusion d'huile est elle-même surmontée d'un piège à azote liquide pour maintenir la rétrodiffusion d'huile dans l'enceinte à un taux négligeable.

A 10^{-7} Torr, la densité de gaz résiduel dans l'enceinte est de 3×10^9 at/cm³. Le libre parcours moyen d'un atome de sodium dans son état fondamental est alors bien supérieur à 100 m, ce qui est largement plus grand que les dimensions de l'enceinte. Pour les atomes de sodium dans un état de Rydberg $|n\ell\rangle$, le libre parcours moyen est considérablement plus petit. En supposant que la section efficace des collisions avec les molécules du gaz résiduel et responsables de transferts sature aux alentours de $n = 25$, elle est alors inférieure à 10^5 \AA^2 . Le libre parcours moyen est supérieur à 30 cm environ, ce qui permet aux atomes excités de subsister dans leur état initial -en l'absence de tout autre processus de transfert- pendant un temps plus grand que 30 μs .

Les processus de collisions à l'intérieur du jet nécessitent un examen plus approfondi. Nous n'envisagerons ici que les collisions sodium-sodium excité et pas les collisions entre états de Rydberg car la densité de ces derniers est faible comparée à la densité d'atomes de sodium dans l'état fondamental. Appelons d le diamètre du trou de sortie du four et ℓ la distance qui sépare ce trou et la région utile du jet (dans la plupart de nos expériences, $d \sim 1$ mm et $\ell \sim 20$ cm). La divergence du jet est fixée par la longueur du tube de sortie du four et par la pression qui y règne. La plupart de nos expériences n'exigent pas une forte densité de jet. Le four n'était donc pas muni de système multicanal permettant une collimation initiale du jet. Seules les expériences d'effet maser (chapitre VIII) demandaient un nombre d'atomes excités plus élevé. Nous l'avons atteint en rapprochant le four de la région d'interaction ($\ell \sim 7$ cm) et en augmentant la taille du trou de sortie du four ($d \sim 4$ mm). L'angle de divergence du jet est proche de 1 radian. Il en résulte que la densité atomique n_ℓ à la distance ℓ vaut :

$$n_\ell \sim n_0 \left(\frac{d}{2\ell} \right)^2 \quad (\text{IV.3})$$

où n_0 est la densité atomique à la sortie du four, liée à la pression de vapeur du sodium à la température du four. La densité typique d'atomes au niveau de la région d'interaction varie donc de 2×10^8 at/cm³ (four à 250°C) à 2×10^{10} at/cm³ (four à 400°). Dans le cas du maser, elle est voisine de 3×10^{12} at/cm³. Comme la région commune aux faisceaux lasers et au jet a un volume de quelques mm³ environ, environ 10^5 à 5×10^9 atomes interagissent avec les lasers, qui excitent dans un niveau $n \sim 30$ environ 10^2 à 5×10^6 atomes (une valeur typique étant 10^4 atomes de Rydberg créés par impulsion laser).

On peut se faire une idée des collisions entre atomes du jet en raisonnant de la manière suivante : plaçons-nous dans le référentiel propre d'un atome donné du jet. Il entrera en collision avec les atomes dont les vitesses dans ce référentiel sont dirigées vers l'atome considéré. On peut considérer que tous les atomes du jet ont des vitesses de même direction, mais de valeurs différentes. A cause de la grande largeur de la distribution maxwellienne des vitesses dans un jet, qui est de l'ordre de la vitesse moyenne \bar{v} de la distribution, la distribution des vitesses dans le repère de l'atome sera centrée

en $v = 0$, avec une largeur de l'ordre de v : ceci nous conduit à supposer que le jet, dans le repère d'un atome en mouvement, ressemble à un "gaz unidirectionnel" dont la pression est celle qui règne au niveau de l'atome qui se déplace. Le libre parcours moyen λ'_ℓ dans la direction du jet est donné par :

$$\lambda'_\ell = \frac{1}{n_\ell \sigma} \quad (\text{IV.4})$$

Pour obtenir le libre parcours moyen dans le repère du laboratoire λ_ℓ , il faut rajouter la longueur $\bar{v}t$ où t est le temps moyen entre deux collisions qui est peu différent de λ'_ℓ/v . On obtient donc :

$$\lambda_\ell \approx \frac{2}{n_\ell \sigma} \quad (\text{IV.5})$$

En prenant une section efficace σ de 10^5 \AA^2 , on obtient un libre parcours qui varie de 10 m à 10 cm pour des densités de 2×10^8 à $2 \times 10^{10} \text{ at/cm}^3$, et atteint seulement quelques mm pour $n_\ell = 3 \times 10^{12} \text{ at/cm}^3$. Ces chiffres, dont il faut souligner le caractère très approximatif à cause de notre mauvaise connaissance de σ et du caractère très approché de l'expression (IV.5), sont certainement pessimistes, car nous avons pu observer, dans les conditions de densité élevée, une propagation d'états de Rydberg excités sur une distance de plusieurs centimètres.

2. IONISATION PAR CHAMP

Nous allons décrire maintenant la détection des états très excités par ionisation sélective dans un champ électrostatique. Cette méthode ⁽¹²¹⁾(¹²²), spécifique des états de Rydberg, présente, nous le verrons, de nombreux avantages.

Le dispositif expérimental est décrit sur la figure 37 : le jet d'atomes passe entre les deux plaques d'un condensateur plan (dimensions 5 cm × 5 cm environ, distance entre plaques 0,8 mm à 1 cm, définie par des cales de plexiglass).

CHAMPS D'IONISATION EN V/cm CALCULES PAR L'EXPRESSION HYDROGENOÏDE

n	niveaux S	niveaux P	niveaux D
23	1 462	1 336	1 151
24	1 220	1 120	971
25	1 027	946	825
26	870	804	705
27	742	688	606
28	637	592	524
29	550	512	455
30	477	445	398
31	416	389	349
32	364	342	307
33	320	301	271
34	283	266	241
35	251	236	215
36	223	211	192
37	199	188	172
38	178	169	154
39	160	152	139
40	144	137	126

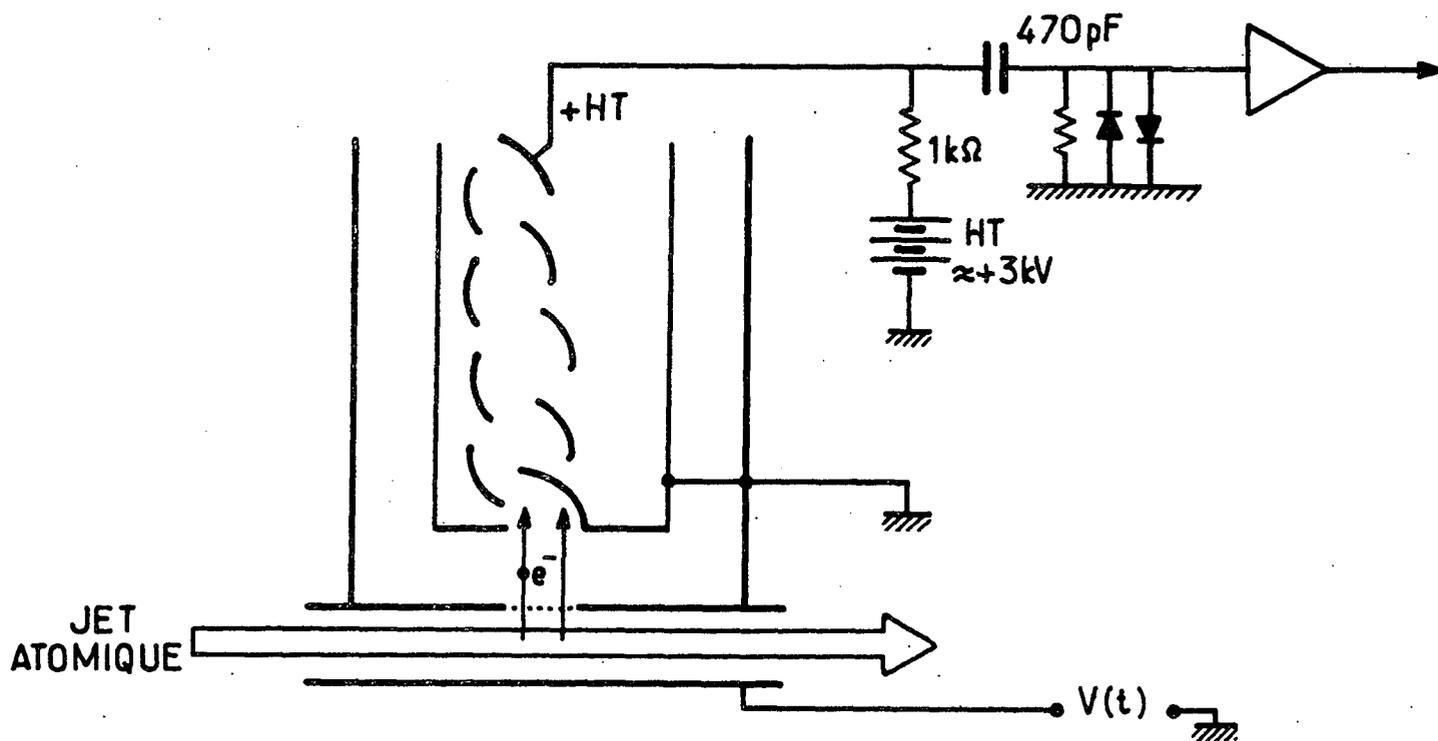


Fig - 37

La plaque inférieure du condensateur est connectée par un câble blindé à un générateur de pulse de tension $V(t)$. La plaque supérieure, reliée à la masse générale de l'expérience, comporte en son centre un trou de 1 cm^2 recouvert par une grille très fine. La première dynode d'un multiplicateur d'électrons à dynodes discrètes RTC 50 P3R est placée 1 cm au-dessus de cette grille et collecte les particules chargées résultant de l'ionisation des atomes très excités du jet par le champ électrostatique qui règne à l'intérieur du condensateur. Un tel dispositif permet donc de détecter les états excités dont le champ critique d'ionisation F_c est inférieur ou égal au champ créé dans le condensateur.

Le tableau ci-contre donne les valeurs des champs critiques F_c pour les niveaux de Rydberg S, P et D entre 23 et 40, calculés par la formule hydrogénoïde :

$$F_c = \frac{q}{4\pi\epsilon_0 a_0^2} \frac{1}{16V^4} = \frac{3,21 \times 10^8}{V^4} \text{ V/cm} \quad (\text{IV.6})$$

Nous avons vu, dans le chapitre III, que ces valeurs ne correspondaient pas exactement au champ critique réel d'ionisation, mais elles en donnent une valeur approchée qui permet de fixer les idées. Le tableau montre donc qu'il suffit d'un champ inférieur à 1,5 kV/cm pour ioniser tous les états de $n \geq 23$, et d'autre part que les champs critiques entre niveaux consécutifs d'une même série diffèrent dans cette gamme de quelques dizaines de volts.

Il suffit alors d'appliquer la méthode suivante pour obtenir un signal qui sélectionne les différents états de Rydberg entre eux (voir figure 38) : l'impulsion de tension $V(t)$ est en fait une rampe de tension qui démarre à partir de $V = 0$ à un instant donné t_0 et croît jusqu'à une valeur V_{\max} . Pendant la montée de l'impulsion, le champ à l'intérieur du condensateur passe par toutes les valeurs croissantes et franchit donc successivement les seuils d'ionisation de tous les niveaux de Rydberg, en commençant par les plus excités.

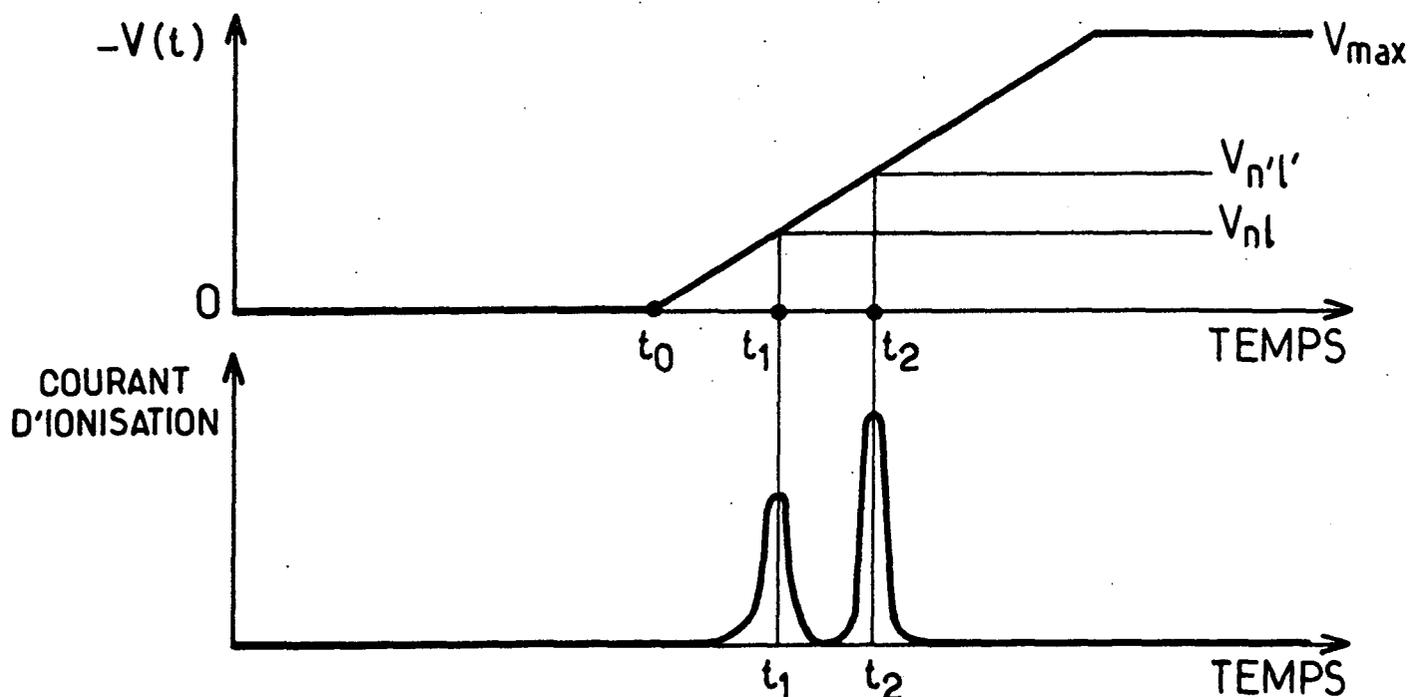


Fig - 38

Supposons par exemple que deux niveaux de Rydberg $|n\ell\rangle$ et $|n'\ell'\rangle$ soient peuplés à l'instant t_0 du début du processus d'ionisation. Alors le niveau le plus excité, ici $|n\ell\rangle$, sera d'abord ionisé à l'instant t_1 et donnera naissance à un pic dans le courant d'ionisation centré autour de l'instant t_1 . Puis le niveau $|n'\ell'\rangle$ sera ionisé à l'instant ultérieur t_2 où le champ électrostatique atteindra le seuil d'ionisation du niveau $|n'\ell'\rangle$. Le courant d'ionisation enregistré en fonction du temps apparaîtra donc sous la forme d'un "spectre" formé de pics correspondant aux différents niveaux de Rydberg et dont l'aire est proportionnelle à la population de l'état considéré au moment de l'ionisation.

On obtient donc une information très complète sur l'état du système au moment de la mesure. L'inconvénient d'une telle mesure est qu'il détruit l'atome observé au moment de l'observation. Il n'est donc pas possible de suivre l'évolution des populations d'un atome donné en fonction du temps, mais seulement de l'échantillonner en réalisant l'ionisation à des instants différents sur des atomes excités par des impulsions lasers successives.

Quels sont les phénomènes qui limitent la résolution de notre "spectroscopie à niveaux de Rydberg"? Il faut pouvoir être capable de distinguer le pic d'ionisation venant d'un niveau donné avec le pic provenant du niveau voisin :

- Tout d'abord, il faut que le processus d'ionisation d'un niveau donné soit concentré le plus possible dans le temps. Pour cela, il est infiniment préférable de détecter les électrons issus de l'ionisation des atomes plutôt que les ions; en effet, la dispersion des temps de transit jet-entrée du multiplicateur est très faible pour les électrons, même accélérés sous une faible tension, à cause de leur très grande vitesse (ils sont en fait accélérés, dans cette expérience, par une tension proche de la moitié de la tension appliquée entre les plaques du condensateur). D'autre part, il faut minimiser au maximum les inhomogénéités de champ à l'intérieur du condensateur et, pour cela, placer la grille loin des bords du condensateur et utiliser une grille la plus plane possible. Le taux de croissance du champ en fonction du temps n'a, lui, aucune incidence sur la résolution, puisqu'il agit de la même manière sur le temps d'ionisation d'un niveau donné et sur le temps qui sépare l'ionisation de deux niveaux consécutifs.

■ La détection de l'ionisation étant quasiment instantanée et l'homogénéité du champ dans le condensateur meilleure que 1%, on peut espérer pouvoir séparer des niveaux dont les énergies d'ionisation ne diffèrent que de quelques volts. En fait, il n'en est rien car, comme nous l'avons souligné dans le chapitre III, la notion de seuil du phénomène d'ionisation n'est pas rigoureuse et celle-ci se produit sur un domaine large de plusieurs volts qui dépend des caractéristiques exactes du pulse de tension $V(t)$. De plus, les différents sous-niveaux correspondant à des valeurs différentes de m_L s'ionisent dans des champs différents (¹⁰⁷). Ces limitations intrinsèques au phénomène d'ionisation limitent la résolution de notre spectroscopie : il n'est pas possible de discriminer simplement les sous-niveaux de structure fine d'un niveau donné (il est cependant possible de le faire dans certaines circonstances (¹⁰⁷)), mais il n'est pas possible non plus de distinguer simplement les différents niveaux $|n\ell\rangle$ ayant des valeurs très peu différentes du nombre quantique effectif $n - \delta_\ell$. La seule manière de les distinguer est la forme précise du signal d'ionisation qui présente d'autant plus de structures que le moment cinétique ℓ est plus grand. Il est par contre parfaitement possible de séparer les signaux d'ionisation issus de niveaux dont les nombres quantiques effectifs diffèrent de plus d'une demi-unité, et cela sans limitation supérieure sur la valeur de n . Si on regarde les phénomènes dans le détail, les choses sont plus compliquées (en particulier, des niveaux bien séparés en champ nul comme les niveaux nS et $(n-1)P$ s'ionisent en fait pour des valeurs de champs très proches) mais les conclusions énoncées restent valables.

Le "spectroscopie à états de Rydberg" a donc une très bonne résolution (il faudrait un spectroscopie optique à très haute résolution pour distinguer les raies de fluorescence correspondantes), mais il a aussi une excellente luminosité, indépendante de sa résolution, à la différence des spectroscopies optiques dont la luminosité diminue quand la résolution augmente. En effet, le processus d'ionisation par champ ionise tous les atomes dans un état de Rydberg donné, le champ électrostatique accélère dans la même direction tous les électrons résultant de l'ionisation et le rendement quantique du processus de multiplication électronique est proche de 1 dès que l'électron incident a une énergie supérieure à quelques dizaines d'électrons-volts. Le rendement du processus de détection est donc proche de 1 et n'est limité que

par la transparence de la grille et le rendement du processus de multiplication. On gagne donc un facteur de l'ordre de 100 par rapport à une détection optique, à cause de l'angle solide limité de collection des photons et du faible rendement quantique d'un photomultiplicateur. On peut donc en fait pratiquement compter un par un tous les atomes portés dans un état très excité donné. Nous verrons, dans les chapitres suivants, tous les avantages de cette extraordinaire sensibilité de détection.

Donnons maintenant quelques détails techniques sur le système de détection :

- Le générateur de pulse de champ donne des impulsions négatives qui passent de 0 à quelques kilovolts sur un temps de l'ordre de la microseconde. Nous avons utilisé des systèmes différents pour produire ces impulsions haute tension rapides. Si on désire des impulsions de haute tension ($> \text{kV}$) et très rapides ($< 100 \text{ ns}$), il est nécessaire d'utiliser un système déclenché par thyatron (décrit par exemple dans la thèse de 3ème cycle de J.M. RAIMOND (73)) ou par krytron (générateur ORTEC HV 100N ; temps de montée : quelques ns). Ces systèmes, basés sur des tubes à avalanche, ont l'inconvénient de présenter des instabilités de coup à coup dans la forme exacte de la rampe $V(t)$ et dans la valeur de V_{max} , ce qui peut être gênant si on veut moyenner les signaux sur un certain nombre de coups successifs du laser. Pour des impulsions de tension inférieure ($< 1,5 \text{ kV}$) et de temps de montée plus grand ($\gtrsim 1 \mu\text{s}$), des systèmes basés soit sur une série de transistors haute-tension fonctionnant en régime d'avalanche, soit sur des tubes à vide rapides, sont préférables car ils assurent une reproductibilité quasi parfaite de la forme de $V(t)$ de coup à coup, et permettent de construire très facilement n'importe quel pulse de tension de temps de montée, temps de palier, temps de descente ajustable à volonté. En fonctionnement courant, les pics dans le courant d'ionisation correspondants à des niveaux consécutifs sont séparés d'un temps inférieur ou égal à 100 ns.
- Le multiplicateur d'électrons est polarisé de telle sorte que la première dynode est au potentiel de la masse et de la plaque du condensateur portant la grille. En effet, toute tension accélératrice entre la région d'ionisation et l'entrée du multiplicateur d'électrons est génératrice de signal parasite qui perturbe les mesures; cela est dû au fait que les électrons existant dans

la chambre à vide ou résultant de la photonisation des atomes, ou des surfaces voisines, sont alors recueillis et comptés par le multiplicateur. De même, l'installation d'une optique électronique destinée à focaliser les électrons sur le multiplicateur et ainsi à augmenter la taille de la région utile d'ionisation nécessite l'installation de tensions accélératrices génératrices de signaux parasites. L'autre avantage d'une telle polarisation de la chaîne de dynodes du multiplicateur est un meilleur écrantage du champ de fuite du multiplicateur : en effet, le point de plus haute tension du multiplicateur, qui est alors l'anode, se trouve à l'autre extrémité, donc très loin de la grille. Il est alors facile de l'écranter par une cage de Faraday. Le champ de fuite à travers la grille au niveau de la région d'ionisation n'est alors pas supérieur à 0,1 V/cm. Nous verrons que ce champ très faible est cependant suffisant pour perturber certaines de nos mesures.

■ L'inconvénient d'un tel montage est alors que le signal anodique se trouve sur une haute tension positive ($\leq 3,5$ kV). Il faut donc le découpler de cette haute tension, ce qui est fait par l'intermédiaire d'un condensateur haute tension. Le signal une fois ramené à un potentiel proche de 0 est amplifié par un ou plusieurs préamplificateurs rapides à faible bruit (SCD ou SCHLUMBERGER type 741) . Le risque existe cependant d'un microclaquage dans le condensateur ou, plus souvent, d'un claquage entre dynodes du multiplicateur à cause d'un léger dépôt de sodium métal. Le pulse de haute tension qui en résulte peut traverser le condensateur et endommager le premier amplificateur. Nous avons donc disposé entre le condensateur et le premier amplificateur un système de protection formé de diodes rapides placées tête bêche. Ce système met à la masse les impulsions moyenne tension même très rapides et sert de fusible pour les éventuelles impulsions haute tension.

■ Enfin, le signal issu du multiplicateur d'électrons, une fois convenablement amplifié, doit être traité et, le cas échéant, moyenné. Plusieurs techniques ont été utilisées :

• i) Lorsqu'il s'agit de contrôler les phénomènes et voir qualitativement leur évolution en fonction de certains paramètres, le signal est simplement envoyé sur un oscilloscope rapide (TEKTRONIX R7912) qui permet donc de voir le signal d'ionisation en fonction du temps. Les différents pics d'ionisation qui apparaissent sont identifiés en balayant la longueur d'onde d'exci-

tation de manière à faire apparaître successivement les pics d'ionisation correspondant à des niveaux consécutifs. Cette méthode ne permet évidemment de repérer que les niveaux S et D; la position des niveaux P et F est déduite par interpolation ou en réalisant des transitions S-P ou D-P ou D-F par une onde millimétrique (voir chapitre VII).

• ii) Le TEKTRONIX R7912 est en fait plus qu'un oscilloscope rapide, c'est un digitaliseur de transitoires, qui permet de stocker toute l'information contenue dans une trace donnée. En effet, les coordonnées des points illuminés sur l'écran de l'oscilloscope sont digitalisées et stockées dans une mémoire (l'appareil enregistre en fait 512 points répartis sur la trace). Le contenu de cette mémoire peut être transféré avant le coup suivant du laser dans un moyenneur multicanal construit par l'atelier d'électronique du laboratoire, dont les 512 mémoires contiennent alors les ordonnées des points successifs de la trace. On peut alors éventuellement ajouter point par point les différentes traces correspondant à des coups successifs du laser pour améliorer le rapport signal sur bruit, ou bien retrancher deux traces données pour faire apparaître les éventuelles différences entre deux signaux. Le contenu des mémoires du moyenneur peut être transféré sur un enregistreur X-Y ou bien sur bande perforée pour pouvoir être ensuite traité par ordinateur. Il peut aussi être transféré sur bande magnétique, comme indiqué dans la thèse de 3ème cycle de J.M. RAIMOND (73).

• iii) Dans de nombreuses expériences, il est nécessaire d'avoir un signal analogique proportionnel à la population d'un niveau de Rydberg donné. Pour cela, nous utilisons un boxcar (PAR 162 avec tiroirs PAR 164). Cet appareil n'enregistre le signal que pendant le temps Δt d'une porte donnée ajustable en durée et en position. Il suffit donc de disposer cette porte de manière qu'elle corresponde au signal d'ionisation d'un niveau donné en excluant les signaux d'ionisation des niveaux voisins. Le boxcar n'enregistre alors que les atomes ionisés dans un niveau donné. Une quantité d'électricité proportionnelle à ce signal est alors stockée de manière analogique dans un condensateur jusqu'au coup suivant du laser. Pour obtenir un signal qui ne croisse pas linéairement en fonction du temps mais garde une valeur constante proportionnelle à la moyenne du signal reçu pendant N portes successives, le condensateur se décharge légèrement pendant l'ouverture de la porte, avec une constante de temps τ . Le nombre N de signaux moyennés est de l'ordre de $\tau/\Delta t$.

En général, celui-ci est de l'ordre de quelques dizaines. L'appareil dispose en outre d'une mémoire digitale utile pour "rafraichir" la mémoire constituée par le condensateur et compenser ses pertes par fuite entre deux coups du laser. Cette mémoire est utile dans notre cas, car nous travaillons à faible taux de répétition (~ 10 Hz). A la sortie du boxcar, on dispose donc d'un signal analogique proportionnel à la moyenne de la population d'un niveau de Rydberg donné sur une dizaine d'impulsions du laser. On peut enregistrer alors les variations de cette population en fonction d'un paramètre variable de l'expérience. En fait, le boxcar PAR 162 est bicanal et peut enregistrer et moyennner les signaux dans deux portes différentes (mais de largeurs identiques) : on peut donc mesurer simultanément les populations de deux niveaux ou même mesurer le quotient des populations de deux niveaux donnés. Le signal quotient est alors nettement moins sensible aux fluctuations de population dues aux fluctuations d'intensité et de fréquence de l'excitation laser (ces fluctuations dans la population d'un niveau excité donné peuvent atteindre 50% du signal).

Enfin, pour certaines expériences réalisées sur un jet de très faible intensité, nous avons utilisé un "boxcar digital" réalisé par l'atelier d'électronique du laboratoire qui compte les impulsions provenant d'électrons individuels arrivant dans une porte donnée et ajoute les nombres correspondant à un nombre donné de portes semblables successives.

Nous donnerons, au cours de la description des différentes expériences, dans les chapitres ultérieurs, des précisions supplémentaires sur les aspects expérimentaux spécifiques de telle ou telle expérience.

