DÉPARTEMENT DE PHYSIQUE
DE L'ÉCOLE NORMALE SUPÉRIEURE

LABORATOIRE KASTLER BROSSEL

**THÈSE DE DOCTORAT DE L'UNIVERSITÉ PARIS XI**
**spécialité : Physique Atomique**

**présentée par**
**Emmanuel COURTADE**

**pour obtenir le grade de**
**Docteur en Sciences de l'Université Paris XI Orsay**

**Sujet de la thèse :**

# POMPAGE OPTIQUE DE L'HÉLIUM DANS DES CONDITIONS NON-STANDARD

**Soutenue le 28 Septembre 2001 devant la commission d'examen :**

| | | |
|---|---|---|
| M. | M.A. BOUCHENE | Rapporteur |
| Mme | C. DEDONDER | Examinatrice |
| M. | T. DOHNALIK | Examinateur |
| M. | S. ESSABAA | Examinateur |
| M. | W. HEIL | Rapporteur |
| Mme | M. LEDUC | Examinatrice invitée |
| M. | P.J. NACHER | Directeur de thèse |

Ce travail est à la fois le fruit d'un environnement scientifique et humain ainsi que de collaborations avec des chercheurs et des techniciens.

Je tiens tout d'abord à remercier Michèle Leduc qui m'a acueilli au laboratoire Kastler Brossel. Jacques Dupont-Roc, Genviève Tastevin et Franck Laloë m'ont fait bénéficier de leur savoir et de leur savoir-faire au travers de discussions autour de l'hélium. J'ai aussi eu un grand plaisir à collaborer avec Tomasz Dohnalik avec qui j'ai appris tant la sagesse scientifique qu'humaine, durant les enregistrements des spectres d'hélium ponctués par des pauses figolu.

Je tiens à remercier aussi les membres des ateliers et du secrétariat tant pour leur sympathie que pour leur efficacité. Je pense plus particulièrement à Jean Outrequin et Benoît Lemaire de l'atelier de mécanique qui m'ont enseigné l'art du taraud mais aussi à l'atelier d'électronique avec Patrick Giron et Lionel Perenes qui ne s'est pas simplement investi à m'expliquer les rudiments d'électronique mais aussi à s'intéresser au sujet de mes expériences. Quand au secrétariat, je pense à Geneviève Piard et à la dose quotidienne de bonne humeur de Zohra Ouassyoun.

Ce travail a été aussi rythmé par des moments partagés qui transforment les journées lorsque guette la déprime du signal perdu dans le bruit. Je pense plus particulièrement à Nathalie Piegay et à nos nombreux gâteaux partagés, Xavier Muller, Karen Sauer et Francois Marion pour les pauses glacées chez Alberto, Xavier Maître et son attachement au diable, Markus Holzmann et nos pauses-café, Jean-Noël Fuchs et son Fébrèze, Jamal Choukeife, Christopher Bidinosti et son initiation à la culture francaise.

Au travers de mes études, des professeurs ont su m'éclairer par leur sens profond de la Physique, je pense plus particulièrement au cours de Claude Cohen Tanoudji, à ceux de Serge Haroche et Jean Dalibard. Le professseur Chambord du Lycée Auguste Renoir de Limoges et le professeur J.Ph. Pérez de l'Université Paul Sabatier de Toulouse m'ont donner l'envie d'aller plus loin dans la compréhension de la Physique.

Je tiens enfin à temoigner de l'aventure scientifique que j'ai partagée avec mon directeur de thèse, Pierre-Jean Nacher. Son dynamisme et sa vivacité d'esprit communicatifs ainsi que son investissement au quotidien m'ont stimulé tout au long de ma thèse. Sa très grande sensibilité Physique m'a permis de donner une cohérence à tout ce travail et plus généralement à ma formation scientifique.

# Table des matières

# Introduction

L'hélium-3 hyperpolarisé est utilisé dans de nombreux domaines, comme la physique statistique et la physique nucléaire. Il permet de réaliser des cibles polarisées, permettant d'arriver à des résultats fondamentaux sur la structure du neutron [Becker et al, 99] et fournissant une nouvelle génération de polariseurs large bande pour les faisceaux de neutrons [Surkau et al, 97]. Une application plus récente est l'Imagerie par Résonance Magnétique (IRM) avec du gaz d'hélium-3 polarisé et inhalé par un patient. Cette nouvelle méthode d'imagerie a été découverte en 1994 avec une expérience portant sur des animaux et utilisant du xénon polarisé [Alberts et al, 94]. Elle est aujourd'hui considérée comme un outil prometteur en médecine pulmonaire. L'hélium-3, dépourvu d'effets secondaires, permet une exploration à la fois de l'anatomie et de la fonction des voies respiratoires chez l'homme.

Il existe plusieurs techniques différentes pour polariser le spin nucléaire de l'hélium-3. La méthode la plus simple conceptuellement est celle dite de "force brute" qui consiste à refroidir les atomes dans un champ magnétique élevé. Cette méthode ne permet pas d'obtenir des polarisations nucléaires d'équilibre $M_{eq}$ importantes : pour un champ magnétique de l'ordre du Tesla et une température de l'ordre du Kelvin, on arrive seulement à $M_{eq} \sim 1\%$. A bien plus basse température, la dégénérescence du liquide de Fermi limite la polarisation à quelques % et seul le solide à forte pression atteint de fortes polarisations.

Deux méthodes différentes, toutes deux faisant appel au pompage optique découvert par Kastler en 1966 [Kastler et al, 66], ont été développées en parallèle et bénéficient aujourd'hui des progrès sur les sources lasers : elles permettent d'obtenir des polarisations importantes hors d'équilibre.

L'atome d'hélium dans son état fondamental n'est pas propice au pompage optique direct, en particulier parce que les raies de résonance optique qui correspondent à des transitions vers les niveaux excités se situent dans le domaine de l'ultra-violet. En effet, le niveau le plus proche est le niveau $2^1P_1$, avec une longueur d'onde de 58.5 nm pour la transition. De plus la structure hyperfine de ce niveau est trop petite pour créer une orientation nucléaire de l'état excité pendant sa durée de vie. La méthode d'orientation combine le pompage optique d'une autre espèce atomique et un transfert de polarisation par des processus collisionnels. Dans un cas c'est un atome alcalin, le plus souvent du rubidium, qui est polarisé par pompage optique à 795 nm avec des réseaux de diodes lasers de puissance (plusieurs dizaines voire centaines de watts). Dans l'autre cas c'est l'atome d'hélium porté dans l'état excité $2^3S_1$ métastable peuplé par cascade radiative qui est polarisé à l'aide de la raie intense $2^3S_1$-$2^3P$ à 1083 nm. La première méthode est fondée sur les collisions dites d'échange de spin entre atomes de rubidium et d'hélium [Bouchiat et al, 60],[Walker et al,97] ; la seconde, mise au point par [Colegrove et al, 60] utilise les collisions d'échange de métastabilité entre atomes d'hélium-3 dans les états $2^3S_1$ et $1^1S_0$. Traditionnellement, la technique de pompage optique par échange de métastabilité permet d'obtenir, en champ magnétique faible ($B < 10^{-2}$ Tesla) et à de faibles pressions ($\sim$ mbar), des polarisations nucléaires $M$ importantes ($M \sim 80\%$, [Bigelow et al, 92]) du niveau fondamental de l'hélium-3.

La voie par échange de spin avec un alcalin permet de polariser un volume limité d'hélium-3 (typiquement 100 $cm^3$) dans une cellule à forte pression (plusieurs atmosphères) en un temps de l'ordre de plusieurs heures [Hasson, 99]. L'échange de métastabilité est une méthode qui ne permet de polariser que des pressions faibles de l'ordre du mbar, dans lesquelles on peut facilement entretenir une décharge nécessaire à produire les atomes dans l'état métastable. Par contre les temps de construction de la polarisation sont beaucoup plus courts, de l'ordre de quelques secondes. Les taux de polarisation atteints sont sensiblement supérieurs, les volumes polarisés peuvent atteindre plusieurs litres et d'une façon générale les rythmes de production du gaz polarisé sont nettement plus élevés [Surkau et al, 97].

Un inconvénient important du pompage optique indirect de l'hélium-3 traditionnel est qu'il opère à des pressions faibles qui ne sont en particulier pas favorables aux applications médicales d'IRM nécessitant la production d'hélium-3 gazeux très polarisé et dense : pour pouvoir être inhalé, le gaz doit être à pression atmosphérique.

Une voie prometteuse pour diminuer cet inconvénient est apparue lorsque nous avons montré que l'utilisation d'un fort champ magnétique permet d'opérer plus efficacement à plus forte pression.

Dans ce mémoire nous décrivons un ensemble de travaux ayant contribué à l'amélioration de la compréhension des processus intervenant dans le pompage optique de l'hélium dans des conditions très variées.

Dans une première partie nous faisons apparaître l'importance des corrélations entre vitesse et orientation nucléaire pour les atomes excités présents dans le plasma et soumis au pompage optique. Ces corrélations apparaissent par exemple lorsqu'une lumière monochromatique oriente sélectivement une classe de vitesses et tendent à disparaître sous l'effet des collisions. Nous avons étudié l'effet de ces corrélations sur l'efficacité du pompage optique tant au moyen d'un modèle détaillé que par des mesures expérimentales systématiques. Nous avons montré la grande importance des caractéristiques spectrales fines des lasers utilisés pour le pompage optique et nous donnons des critères précis qu'ils doivent respecter.

Dans la deuxième partie, nous nous intéressons plus spécifiquement à des conditions non standard de pompage optique, en présence d'un fort champ magnétique et à forte pression.

Un effet important d'un champ magnétique intense est de fortement réduire l'influence du couplage hyperfin dans les états excités de l'hélium-3. Ceci a un effet bénéfique en réduisant la perte d'orientation nucléaire dans ces états excités, par exemple au profit de l'émission de lumière polarisée, et peut expliquer l'amélioration obtenue dans certaines conditions. Cela nous a amenés par contre à développer une nouvelle méthode de mesure optique de polarisation au sein du plasma, les méthodes traditionnelles étant inopérantes au dessus de 10 mT. Elle se fonde sur une connaissance précise de la transition à 1083 nm que nous avons donc étudiée en détail lorsqu'elle est affectée par l'effet Zeeman.

En nous fondant sur une étude de cinétique de pompage optique aux fortes pressions et en champ fort, nous avons mis en évidence un processus de relaxation de la polarisation nucléaire qui croît avec l'intensité de la lumière de pompage et limitant par là-même l'efficacité du pompage.

Une étude directe de fluorescence induite par laser nous a permis de détecter la présence de molécules métastables $He_2^*$ dans le plasma et de montrer une forte augmentation de leur densité en présence de lumière de pompage optique à 1083 nm. Il s'agit d'un processus à trois corps plus important à forte pression susceptible d'expliquer les observations précédentes de relaxation sous réserve d'hypothèses raisonnables sur la relaxation provoquée par ces molécules.

# Chapitre 1

# Pompage Optique standard

## 1.1 Introduction

L'élaboration et la validation d'un modèle de pompage optique sont cruciaux tant pour la compréhension de la cinétique de pompage optique que pour l'optimisation des nouvelles sources lasers de puissance à 1083 nm. En effet, suivant les applications envisagées, les objectifs pourront différer. Si le taux de polarisation obtenu est souvent un critère important, pour les applications médicales on s'intéressera plus au rythme de production de gaz polarisé, c'est à dire à l'aimantation totale accumulée et au temps mis pour l'obtenir, qu'à la polarisation nucléaire maximale atteinte. En ce qui concerne les nouveaux lasers de puissance, reposant sur des technologies de fibres dopées à l'ytterbium, l'enjeu des développements est de pouvoir faire absorber par le gaz le maximum de photons polarisés (i.e. de moment angulaire).

Dans un premier temps nous ferons un rappel sur le modèle de pompage optique développé dans notre équipe [Nacher et al, 85] pour le pompage optique de l'hélium-3. Nous présenterons ses évolutions et discuterons quelques conséquences sur la compréhension détaillée des performances du pompage optique et des facteurs limitant son efficacité.

Afin de valider le modèle de pompage optique que nous avons développé et de disposer de critères expérimentaux permettant de déterminer quantitativement l'adéquation d'une source laser à un pompage optique performant en termes de temps de pompage et de polarisation maximale atteinte, nous avons effectué des mesures comparées de l'absorption de différentes technologies de lasers à 1083 nm.

## 1.2 Modèle de pompage optique de l'hélium-3

Ce modèle développé dans [Nacher et al, 85], traite de manière exacte l'interaction de la lumière avec les atomes et l'échange de métastabilité. On considère trois familles d'états atomiques ($1^1\mathrm{S}_0$, $2^3\mathrm{S}_1$, $2^3\mathrm{P}$) et les équations d'évolutions couplées de tous les sous-niveaux Zeeman avec des processus de relaxation phénoménologiques. Sur le diagramme (1.1), on a reporté pour l'hélium-4 les états $2^3\mathrm{S}_1$ et $2^3\mathrm{P}_{0,1,2}$ et les trois raies ($\mathrm{D}_0$, $\mathrm{D}_1$, $\mathrm{D}_2$) ainsi que la structure hyperfine de ces mêmes niveaux pour l'hélium-3 et les raies ($C_1$à $C_9$) s'y rattachant.

Le niveau $2^3S_1$ comporte pour l'hélium-3 deux niveaux hyperfins F=3/2 et F=1/2 séparés de 6.74 GHz et donc 6 sous-niveaux hyperfins notés $A_i$ ($i$=1-6). Le niveau $2^3$P a quant à lui 5 niveaux hyperfins (deux niveaux F=1/2, deux niveaux F=3/2 et un niveau F=5/2) soit 18 sous-niveaux hyperfins notés $B_j$ ($j$=1-18).

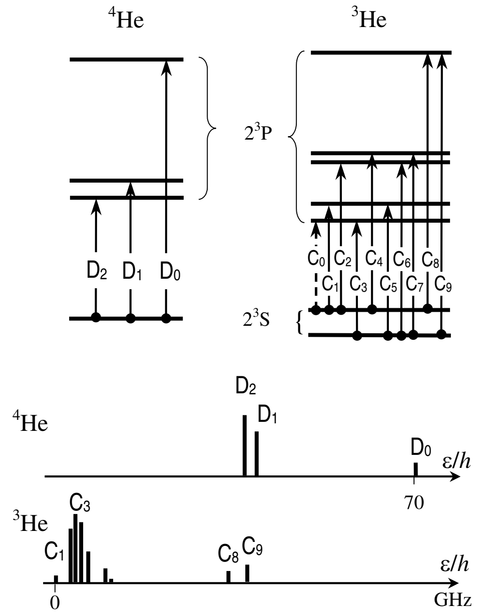


Fig. 1.1 – Composantes en champ nul de la transition à 1083 nm dans l'$^4$He (à gauche) et l'$^3$He (à droite). Les positions relatives des raies sont représentées en tenant compte du décalage isotopique (voir l'article donné en annexe).

Les collisions d'échange de métastabilité permettent à température ambiante de transférer efficacement l'orientation obtenue dans l'état $2^3$S au niveau fondamental. Dans ces collisions il y a un transfert de l'état électronique métastable d'un noyau à l'autre sans que cela affecte les variables de spins électroniques et nucléaires : ceci vient du temps d'interaction très court de ce type de collision ($\sim 10^{-13}$ s) [Dupont-Roc et al, 71]. De plus ces collisions sont trop peu fréquentes ($\sim$ 10 MHz) pour qu'il se crée une cohérence entre sous-niveaux hyperfins (séparés de 6.74 GHz) différents (approximation séculaire de [Partridge et al, 66]) : les cohérences hyperfines s'amortissent très vite après chaque collision.

On considère pour simplifier que la distribution de puissance est uniforme pour la lumière de pompage. S'il s'agit là d'une approximation raisonnable le long de la propagation du faisceau : les absorptions typiques sont faibles en situation de pompage optique, de quelques %/cm. Le profil transverse du faisceau laser n'est en général pas uniforme et dépend de la structure de modes transverses du laser. Dans le cas de lasers monomodes transverses (diodes, fibres), ce profil est gaussien et l'approximation mentionnée revient à caractériser cette distribution par un "créneau". De façon similaire, l'interaction atome-laser dépend de l'écart à résonance ; dans le cas pratique d'une distribution spectrale finie du laser et d'une distribution thermique des vitesses atomiques, il est clair que cette interaction aura une grande dispersion de probabilités. Pour décrire l'interaction avec la lumière de pompage, un modèle exact devrait considérer une distribution continue des probabilités de transition qui dépendent de la vitesse et de la position des atomes et du spectre en fréquence du laser. Le problème de cette description est d'introduire dans le modèle beaucoup de paramètres libres.

Dans [Nacher et al, 85], on ne considérait en fait que deux groupes d'atomes métastables. Tout d'abord un premier groupe pompé par le laser et supposé homogène : il comprend les atomes en résonance et aussi des atomes dont les vitesses diffèrent peu de celle des précédents et qui y sont rapidement couplés. Puis un second groupe d'atomes qui n'interagissent pas avec le laser, son seul rôle étant de contribuer à la relaxation de l'état fondamental par l'échange de métastabilité. Dans cette description, le fait de ne considérer que deux groupes d'atomes ne permet pas de rendre compte du fait que lors de collisions d'échange de métastabilité, les atomes ne restent pas dans la même classe de vitesse après collision mais leurs vitesses sont redistribuées sur tout le profil Doppler.

Ce modèle a été amélioré dans le cadre de notre étude détaillée des processus de pompage optique. On considère maintenant trois groupes d'atomes, pour pouvoir séparer le caractère spatial et spectral de l'interaction avec la lumière de pompage. Il y a un premier groupe d'atomes hors du faisceau laser qui sont couplés au $1^1\mathrm{S}_0$ avec les collisions d'échange de métastabilité. Les autres atomes métastables sont séparés en deux groupes, tout d'abord une fraction $X_S$, appelée fraction spectrale, en résonance avec la lumière et qui l'absorbe avec une probabilité de transition uniforme et une fraction $(1 - X_S)$ qui n'interagit pas avec la lumière. Ces deux derniers groupes d'atomes sont couplés soit par collisions d'échange de métastabilité, soit par des collisions de changement de vitesse. En revanche, ils ne sont pas directement couplés au premier groupe (atomes hors du faisceau laser) par ces mêmes collisions car il s'agit de processus locaux. Même si cette façon de traiter le pompage optique dans l'hélium n'est pas exacte, elle est mieux adaptée à la description recherchée et permet cependant des calculs simples avec l'introduction d'un seul paramètre phénoménologique $X_S$. Ce paramètre peut rendre compte de l'interaction des atomes avec la lumière, soit de la façon dont les atomes ont d'absorber la lumière, soit des caractéristiques spectrales de la lumière.

**Corrélations entre variables internes et externes dans le pompage optique indirect de l'hélium** Il pourrait résulter du caractère très sélectif en vitesse d'une excitation laser monochromatique des orientations différentes pour chacune des classes de vitesses du profil Doppler, conduisant à une surpolarisation la classe à résonance. En fait ces corrélations sont affectées par des collisions qui tendent à les détruire, et qu'on distingue en deux types :

→ d'une part des collisions inélastiques pour les variables internes, qui résultent de l'échange de métastabilité avec le fondamental. Elles redistribuent la vitesse des atomes métastables de façon aléatoire dans tout le profil Doppler lors d'une collision (à paramètre d'impact faible). Ces collisions tendent à coupler les orientations des différentes classes de vitesses par conservation du spin électronique dans l'échange de métastabilité.

$\rightarrow$ d'autre part des collisions élastiques (à grand paramètre d'impact) où seule la vitesse change, avec une probabilité d'autant plus grande que le changement de vitesse qui en résulte est faible. Elles tendent à égaliser les orientations des classes de vitesses les plus proches.

Pour confirmer l'existence de ces deux types de collisions et quantifier leur importance relative, nous avons effectué quelques expériences exploratoires d'absorption saturée qui seront décrites plus loin, en utilisant deux lasers indépendants pour avoir des faisceaux sonde et pompe à des fréquences distinctes.

**Absorption de la lumière à 1083 nm** Pour un laser monochromatique et pour une transition $\mathrm{A}_i \rightarrow \mathrm{B}_j$ (d'un état $\mathrm{A}_i$ du niveau $2^3$S à un état $\mathrm{B}_j$ du niveau $2^3$P) on peut écrire la probabilité d'absorption par unité de temps $1/\tau_{ij}$ proportionnelle à l'intensité par unité de surface $I/S$ du laser sous la forme [Nacher et al, 85] :

$$\frac{1}{\tau_{ij}} = \gamma_k T_{ij} \tag{1.1}$$

où :

$$\gamma_k = \frac{4\pi\alpha f}{m\omega\Gamma}\frac{I}{S}\frac{(\Gamma/2)^2}{(\Gamma/2)^2 + (\omega - \omega_k)^2} \tag{1.2}$$

$\alpha$ : constante de structure fine, $f = 0.5391$ : force d'oscillateur totale de la transition $2^3$S-$2^3$P [Wiese et al, 66], $m = 0.91 \times 10^{-30}$ kg : masse de l'électron, $\omega$ : pulsation du laser ; $\omega_k$ : pulsation de la transition correspondant à la composante $\mathrm{C}_k$ ; $T_{ij}$ : éléments de la matrice de transition faisant passer d'un état $\mathrm{A}_i$ à un état $\mathrm{B}_j$ et $\Gamma/2$ : taux d'amortissement de la cohérence optique.

Pour l'atome d'hélium et la transition à 1083 nm, le temps de vie $\tau$ de l'état excité $2^3$P est $\tau = 10^{-7}$ s, on associe une largeur naturelle $\Gamma_n/2\pi = 1/2\pi\tau = 1.6$ MHz.

L'élargissement collisionnel est de l'ordre de $\Gamma_{coll}/2\pi = 20$ MHz/torr, en général dominant pour déterminer la largeur totale de la raie [Bloch et al, 85]. Pour la fraction des atomes effectivement en résonance avec le laser, on peut donc écrire :

$$\Gamma = \Gamma_n + \Gamma_{coll} \tag{1.3}$$

Dans un gaz d'hélium-3 à 300 K, on a une distribution Doppler des vitesses ($D = 2$ GHz FWHM). Dans le cas d'une excitation monochromatique, seule une faible fraction $Xs$ des atomes absorbe la lumière et participe au pompage optique : on peut définir ici un $Xs = \Gamma/D \sim 1\%$ à un torr.

Ce paramètre $X_S$ peut aussi rendre compte des caractéristiques du laser lui-même. En effet, si on considère maintenant non plus un laser monomode mais multimode comme les lasers LNA qui ont un spectre large couvrant le profil Doppler, ce recouvrement sera bien évidemment décrit par un paramètre $Xs$ plus important (voir discussion 1.3.4).

**Méthode de résolution** La méthode de résolution du système non-linéaire d'équations couplées repose sur l'existence de constantes de temps très différentes pour l'évolution des processus intervenant dans le pompage optique indirect de l'hélium. En fait les populations de l'état métastable sont des variables rapides qui évoluent essentiellement sous l'effet de l'échange de métastabilité dont l'échelle de temps caractéristique est, à 300 K, de l'ordre de $10^{-6}$ s. La polarisation nucléaire $M$ dans le fondamental évolue quant à elle avec des constantes de temps beaucoup plus longues (de l'ordre de la sec). Pour la résolution du système d'équations, on cherche pour un $M$ donné les états stationnaires des populations du métastable, à partir desquelles on calcule $\partial M/\partial t$. On peut en effet calculer l'absorption de la lumière de pompage compte tenu de ces populations et de celles du $2^3$P (qui influent sur l'absorption nette de la lumière de pompage optique en raison des effets d'émission induite). On peut ainsi calculer la dynamique lente du pompage optique et obtenir la polarisation d'équilibre atteinte en régime stationnaire.

## 1.3 Cinétique de pompage optique

### 1.3.1 Conditions standard pour le pompage optique

Pour obtenir de forts taux de polarisation, on doit réunir deux conditions souvent antagonistes : il faut une forte densité d'atomes métastables et des temps de relaxation de la polarisation nucléaire $M$ dans l'état fondamental assez longs.

Une décharge radiofréquence permet d'exciter les atomes et une fraction d'entre-eux vient peupler l'état métastable $2^3$S après cascade radiative. Si la pression du gaz d'hélium-3 à 300 K est trop basse ($\leq 1$ mbar), la diffusion des métastables vers la paroi est très rapide. Il faut alors très fréquemment réalimenter l'état métastable en excitant un atome dans le fondamental, et si ce dernier est polarisé, une partie du spin nucléaire sera transféré au cortège électronique par couplage hyperfin dans la cascade radiative, ce qui conduit à une relaxation rapide. Si la pression du gaz est trop forte, des collisions avec les impuretés mais surtout des collisions Penning auto-ionisantes et/ou des collisions à trois corps avec le fondamental (qui créent par exemple une molécule métastable, voir (2.2.2)), limitent la densité absolue des atomes métastables. Il existe en pratique un optimum de pression autour du mbar [Leduc et al, 83].

La polarisation nucléaire $M$ peut quant à elle être détruite par divers processus :

→ en présence du plasma, soit dans la cascade radiative comme décrit précédem

ment, soit sous l'effet de collisions avec diverses espèces excitées (molécules métastables, ions moléculaires ...).

→ indépendamment du plasma. Des impuretés paramagnétiques de la paroi de la cellule peuvent créer localement des inhomogénéités de champ magnétique qui peuvent faire basculer le spin nucléaire. Des inhomogénéités de champ magnétique à plus grande échelle (gradients résiduels de champ statique par exemple) peuvent aussi contribuer à relaxer $M$. Dans nos expériences, on peut montrer que le temps caractéristique $T_{1m}$ associé peut s'écrire (dans la limite du rétrécissement par le mouvement [Barbé et al, 74]) :

$$T_{1m} = \frac{1 + (\gamma B_0 \tau_D)^2}{\gamma^2 (\delta B_0)^2 \tau_D} \tag{1.4}$$

avec $\gamma$ : rapport gyromagnétique nucléaire de l'hélium-3, $B_0$ : champ magnétique longitudinal moyen sur la cellule, $\tau_D$ : temps de diffusion d'un atome sur la cellule et $\delta B_0$ : mesure de l'inhomogénéité du champ dans la cellule. Pour les expériences de pompage optique à 300 K et pour une pression de 1.3 mbar, le temps de diffusion typique d'un atome est de 1 msec. Avec un gradient de champ estimé à $10^{-3}$ Gauss/cm, en champ nul $T_{1m}$ ne dépasse pas quelques secondes alors qu'il atteint plusieurs heures si on a une inhomogénéité relative $\delta B_0/B_0 \sim 10^{-4}$. C'est pourquoi on place la cellule dans un faible champ magnétique $B_0$ aussi uniforme que possible.

Les effets indépendants du plasma sont en pratique négligeables dans nos expériences, avec une contribution à la relaxation caractérisée par un temps de l'ordre de l'heure. La relaxation de la polarisation est, dans la cellule de pompage, essentiellement déterminée par les processus intervenant dans la décharge excitatrice.

### 1.3.2 Modèle et discussion

La figure (1.2) donne un exemple de résultat de calcul d'absorption pour différentes conditions d'intensité laser et de recouvrement spectral $X_S$.

Le processus de pompage optique qui crée l'orientation $M$ dans l'état fondamental dépeuple les sous-niveaux Zeeman (apparition d'une polarisation $M^*$ dans l'état métastable) et fait donc décroître l'absorption de la lumière. L'orientation de l'état métastable peut atteindre 20% même si la polarisation nucléaire dans l'état fondamental est nulle. Il y a en fait une compétition entre l'absorption des photons du pompage optique qui tendent à surpolariser une classe de vitessse donnée (processus dépendant de l'intensité lumineuse absorbée et de la polarisation du laser) et les collisions d'échange de métastabilité qui couplent les orientations de toutes les classes de vitesse (processus dépendant de la pression).

Expérimentalement, pour déterminer les caractéristiques spectrales d'un laser, on choisira de préférence une lumière polarisée linéairement ($\sigma$ ou $\pi$) pour diminuer les effets de surpolarisation d'une classe de vitesse : l'alignement conduit à des effets moins importants.

Pour un faisceau laser “ sonde ” de faible intensité (courbe L), l'absorption décroît avec $M$ à cause de la dépopulation des sous-niveaux Zeeman couplés à la lumière. La différence d'absorption avec un grand recouvrement spectral $X_S$ et une puissance laser de 2 W est due à la surpolarisation de l'état métastable. Par contre, la diminution plus importante de l'absorption soit avec un plus faible recouvrement spectral (figure 1.2 (a)(c)) soit avec une intensité de lumière plus grande (figure 1.2 (e)), peut être attribuée aux effets de saturation provenant de l'émission stimulée.

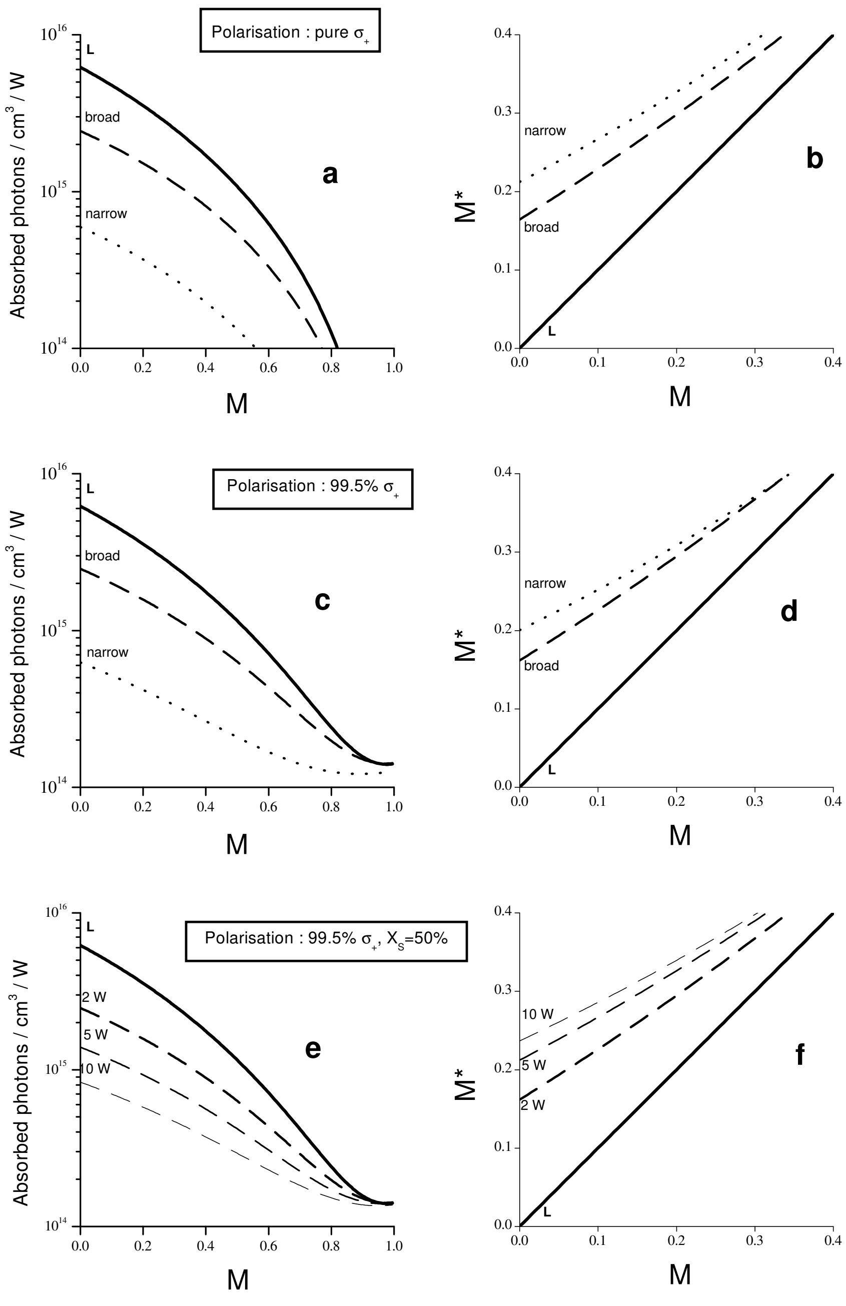


FIG. 1.2 – Absorptions calculées pour une densité d'atomes métastables $n_S$=4.6×$10^{10}$cm$^{-3}$ (décharge faible) et un diamètre de faisceau d=3 cm. (a)(c) Courbes d'absorption pour un faisceau sonde de faible puissance (régime linéaire, L) et pour une puissance incidente laser de 2 W ($X_S$=50%, recouvrement spectral large "broad" ; $X_S$=5%, recouvrement spectral faible "narrow") une lumière complètement polarisée $\sigma^+$ (a) ou avec 99.5% de lumière $\sigma^+$(c). (e) Effet de la puissance laser incidente sur l'absorption de la lumière de pompage pour un recouvrement spectral large ($X_S$=50%) et 99.5% de lumière $\sigma^+$. *(b)(d)(f)* Courbes de la polarisation nucléaire $M^*$ dans le niveau métastable correspondant aux conditions des courbes *(a)(c)(e)*.

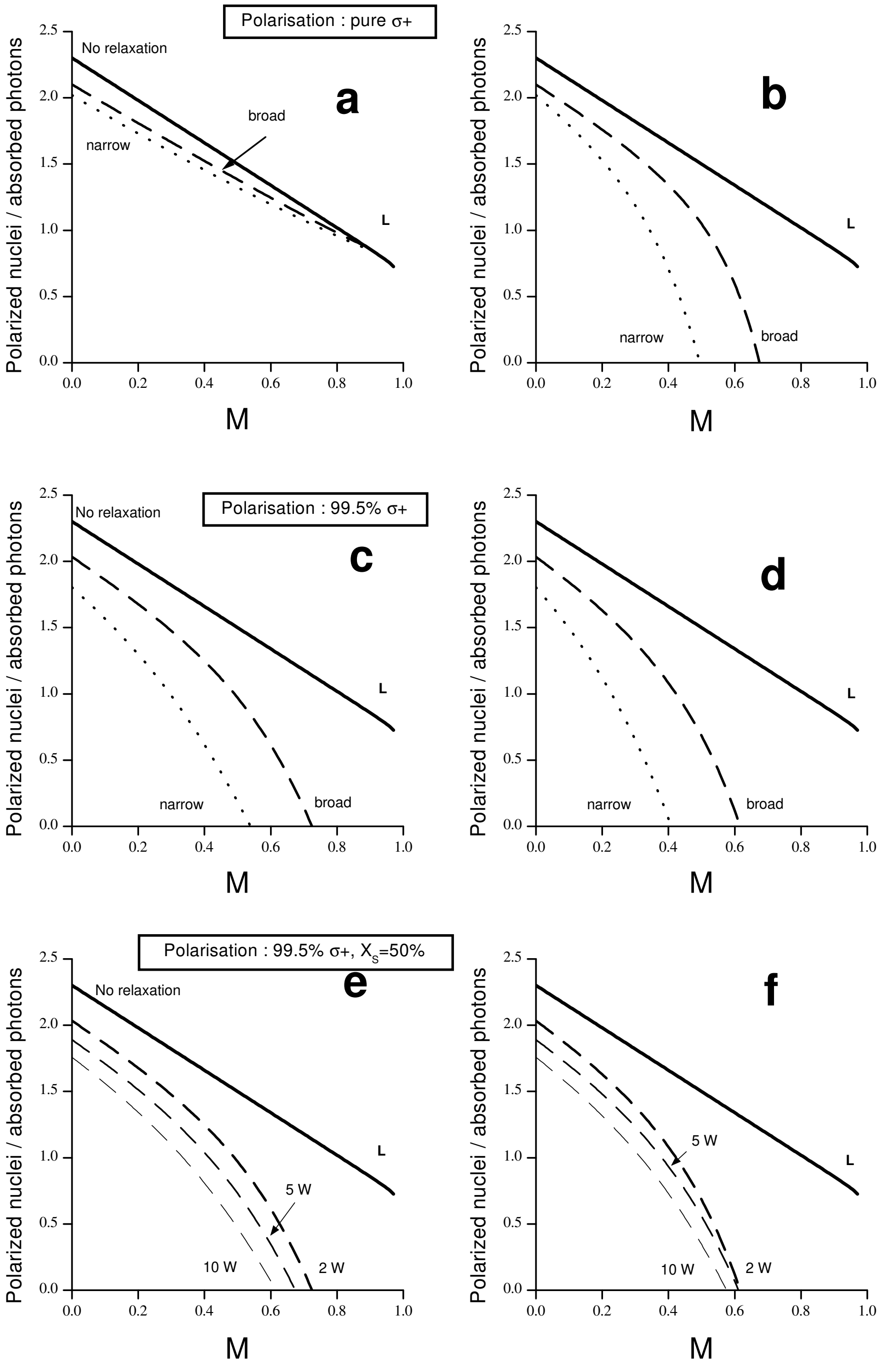


FIG. 1.3 – Courbes de simulation de l'efficacité de la lumière de pompage absorbée pour les mêmes conditions que la figure 1.2. En (a) et (c), on a représenté les effets de recouvrement spectral et de polarisation circulaire et en (e) les effets de la puissance du laser. Pour les courbes (a), (c) et (e), il n'y a pas de relaxation nucléaire ; pour les courbes (b), (d) et (f), on a mis une relaxation nucléaire correspondant aux valeurs mesurées dans une décharge modérée.

Avec le rapport du nombre de noyaux polarisés d'hélium-3 dans l'état fondamental sur le nombre de photons absorbés, on peut traduire l'efficacité du transfert de moment angulaire de la lumière au noyau. Les courbes (1.3 (a)) montrent que si on ignore les processus de relaxation nucléaire cette efficacité pour une polarisation circulaire complète $\sigma^+$ ne dépend pas trop de $M$ mais dépend très fortement du recouvrement spectral de la lumière et de son intensité. Par contre, même un petit défaut de polarisation circulaire (0.5% de polarisation $\sigma^-$) a un effet dramatique pour de grands $M$ car il est absorbé très efficacement (figure 1.3 (c)(e)). Il faut inclure les processus de relaxation (figure 1.3 (b)(d)(f)) pour avoir les efficacités de production de polarisation : ces courbes donnent directement les polarisations d'équilibre.

Ces quelques exemples montrent l'intérêt que présente ce modèle pour discuter de l'importance relative des phénomènes complexes qui entrent en jeu dans les processus intervenant dans le pompage optique de l'hélium, et de l'importance du recouvrement spectral (ici caractérisé par le seul paramètre $X_S$).

### 1.3.3 Description des lasers à 1083 nm

Les lasers accordables à 1083 nm permettant le pompage optique de l'hélium furent d'abord des lasers à centres colorés (centres $F_2^+$ dans des cristaux de NaF) [Leduc et al, 82], dont l'émission présentait l'inconvénient de n'être pas stable dans le temps. Ils furent ensuite remplacés par des lasers à cristaux dopés de Néodyme (LNA) : pompés par des lasers à gaz, ces cristaux fournissent une puissance de l'ordre de 100 mW [Daniels et al, 87] ; ils peuvent aussi être pompés par des diodes lasers, ce qui donne des sources compactes pour la magnétométrie ; la version dans laquelle de grands barreaux cristallins sont excités par des lampes à flash donne des puissances importantes, de l'ordre de plusieurs watts

[Aminoff et al, 89]. Plus récemment des diodes lasers DBR monomodes à 1083 nm (provenance SDL) sont apparues sur le marché avec une puissance maximale de 50 mW [Major et al, 93]. Enfin depuis 1998 des amplificateurs à base de fibre dopée ytterbium (Yb) sont commercialisés par IRE Polus et Keopsys (anciennement Optocom). La combinaison d'une diode laser et d'un tel amplificateur donne une source en configuration dite MOPFA (Master Oscillator and Power Amplifier) [Chernikov et al, 97], voir figure (1.4), délivrant une puissance continue importante (aujourd'hui jusqu'à plusieurs watts).

Keopsys a développé des sources laser où la diode laser est remplacée par un oscillateur lui aussi à fibre dopée Yb.

Le schéma du premier modèle 2 W réalisé avec une source intégrée et totalement fibrée (utilisé par exemple dans [Leduc et al, 00]) est représenté sur la figure (1.5). Elle consiste en un oscillateur maître de faible puissance (“ master oscillator ”) et un amplificateur de fort gain (“ power amplifier ”). Le laser maître est constitué d'une fibre dopée Yb à double coeur (DCF). La cavité laser (oscillateur de version A) se compose de deux miroirs sélectifs en longueur d'onde (réseaux de Bragg à 1083 nm, BG, inscrits dans cette même fibre). Le balayage en fréquence du laser s'effectue en changeant le pas des deux réseaux par une même variation

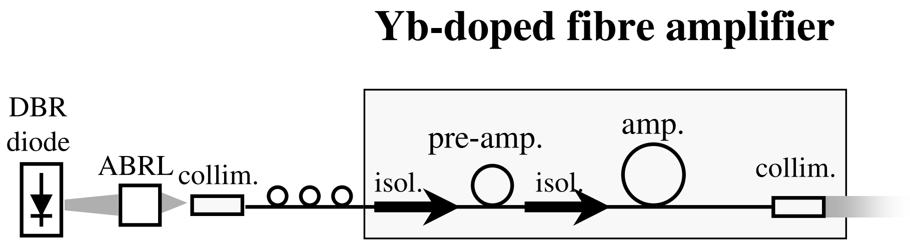


FIG. 1.4 – Schéma de principe de la diode amplifiée. L'oscillateur maître à 1083 nm est une diode laser monomode DBR (SDL, 50 mW, polarisation linéaire), injectée dans l'amplificateur de puissance à fibre (IRE Polus, 0.5 W) via un collimateur d'entrée. Le couplage est effectué au travers du dispositif ABRL (anti back-reflected light), destiné à éviter tout retour de lumière réfléchie vers la diode injectrice ; il est composé d'une lame quart d'onde et d'un cube séparateur.

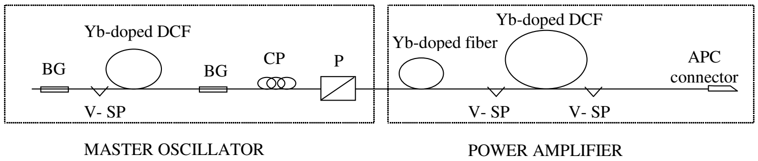


FIG. 1.5 – Schéma de principe du laser à fibre Keopsys 2 W (version A).

de température.

L'amplificateur comporte deux parties : un “ booster ” composé d'une fibre à double coeur d'environ 3.5 m de long et un pré-amplificateur préalable, également à fibre dopée Yb, mais simple coeur. L'oscillateur maître et le “ booster ” sont tous deux pompés longitudinalement par des réseaux de diodes lasers à 970 nm couplées longitudinalement dans la fibre (V-SP : V-groove side pumped). Par contre le pré-amplificateur à fibre situé entre eux est pompé par la lumière d'émission spontanée (ASE : Amplified Stimulated Emission) émise par le “booster ” et contribue au gain total de l'étage d'amplification qui permet d'obtenir une puissance continue de 2 W. Un connecteur APC (Angled Polished Connector) évite une réflexion parasite de la lumière émise, susceptible de perturber le fonctionnement de l'amplificateur.

Le contrôle de la polarisation lumineuse à la sortie du laser maître s'effectue à l'aide d'un contrôleur de polarisation (PC) et d'un polariseur (P) : les réglages sont faits par le constructeur et l'utilisateur n'y a pas accès. Par contre un polariseur en sortie de l'amplification permet d'adapter la polarisation de la lumière délivrée à celle requise pour l'expérience (après traversée d'une fibre souple de 5 m de long, qui n'est pas à conservation de polarisation).

Afin d'améliorer la stabilité de la fréquence d'émission, dans les versions ultérieures la cavité laser a été modifiée. La cavité laser comporte dorénavant un seul réseau de Bragg et un miroir à boucle large bande (coupleur 50% – 50% fibré, replié sur lui-même afin de créer un miroir équivalent). Dans la version B (figure 1.6), le milieu amplificateur est une fibre courte (3.5 m) incluse dans le miroir à boucle. Dans la version C (figure 1.7), une fibre plus longue (5.5 m, à l'extérieur du miroir) permet un intervalle spectral libre plus petit pour les modes

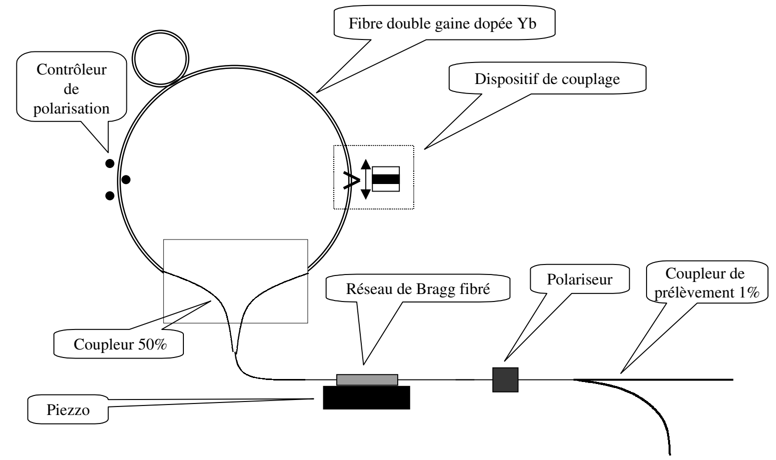


FIG. 1.6 – Version B de l'oscillateur à fibre à 1083 nm (Keopsys 2000) - voir texte. Le "dispositif de couplage" permet l'excitation du milieu amplificateur par la diode de pompage.

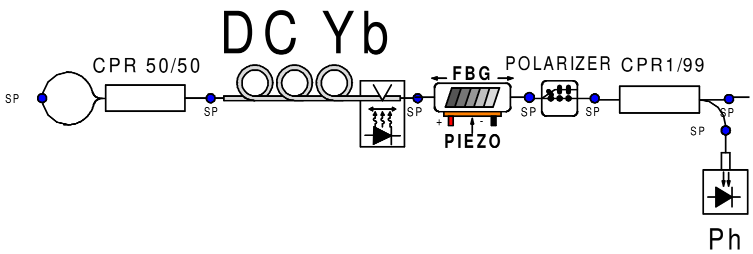


FIG. 1.7 – Version C de l'oscillateur à fibre à 1083 nm (Keopsys 2000) - voir texte. CPR 50/50 : coupleur 50% ; DC Yb : fibre double coeur dopée à l'Yb (milieu amplificateur excité par une diode de pompage) ; FBG : réseau de Bragg inscrit dans la fibre ; PIEZO : cale piezo-électrique pour l'accord en fréquence ; CPR1/99 : coupleur dirigeant 1% de la lumière vers la photodiode Ph du système interne de contrôle ; SP : soudure sur la fibre (splicing).

longitudinaux.

Dans tous les modèles commerciaux disponibles à ce jour, le balayage en fréquence de l'oscillateur laser s'effectue en changeant le pas du réseau de Bragg par une céramique piezo-électrique : on peut ainsi balayer toute la structure fine et hyperfine de l'hélium-3 et de l'hélium-4 (plus de 60 GHz), plus rapidement que par une variation de température. C'est en particulier le cas pour le laser 2 W qui a été utilisé pour l'ensemble des travaux décrits dans cette thèse, qui comporte un oscillateur de version B.

Un prototype 5 W a été récemment développé pour notre équipe par Keopsys (figure 1.8). Il comprend un oscillateur de version C. Il n'y a plus de pré-amplificateur et un isolateur optique[1] est inséré entre l'amplificateur et l'oscillateur

[1] Cette isolation est plus efficace que celle obtenue avec un simple polariseur (comme dans les versions A et B).

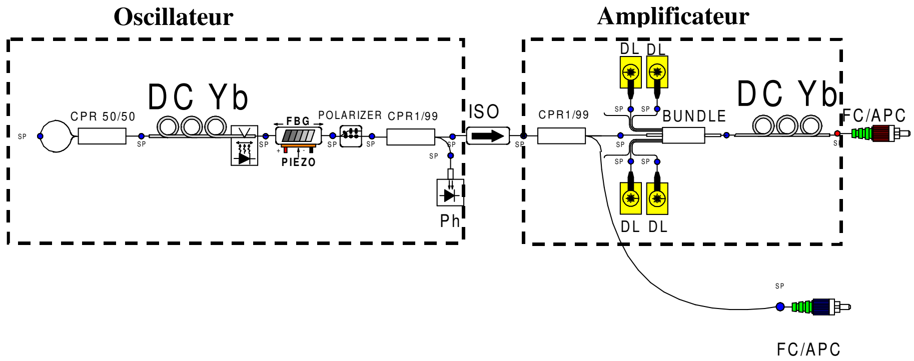


FIG. 1.8 – Prototype du laser à fibre à 1083 nm, 5 W multimode, avec un oscillateur de version C (Keopsys, 2000). Pour l'amplificateur, le couplage aux diodes de pompage (DL) est réalisé à l'aide d'un dispositif fibré (bundle).

pour empêcher l'ASE du "maître" de perturber le fonctionnement de l'oscillateur. La puissance de sortie de l'oscillateur nécessaire à l'excitation de l'amplificateur est faible, de l'ordre du milliwatt. Une faible fraction de la lumière émise par l'oscillateur, prélevée avant amplification, est actuellement disponible pour l'utilisateur à la sortie d'une petite fibre de sortie indépendante. Ce signal de contrôle peut servir par exemple à asservir l'émission sur la raie atomique choisie.

### 1.3.4 Mesures de largeur spectrale du laser 2 W

Pour contrôler la largeur spectrale $L$ du laser spécifiée par le fabricant, nous avons enregistré le profil d'absorption des raies $C_8$ et $C_9$ par balayage de la fréquence du laser 2 W (figure 1.9). Le spectre obtenu résulte de la convolution de

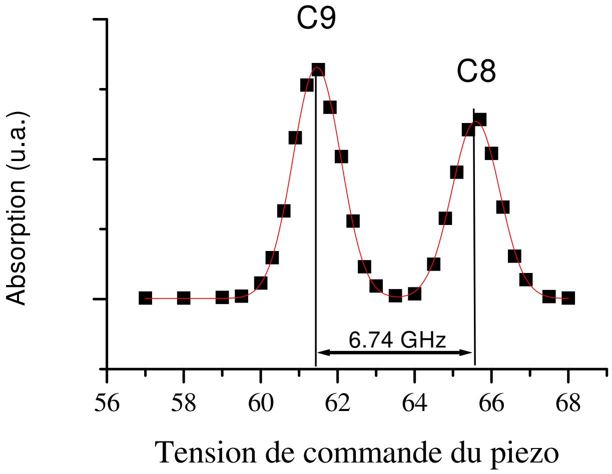


FIG. 1.9 – Balayage $C_8$-$C_9$ avec le laser à fibres pour déterminer sa largeur spectrale $L$. La largeur expérimentale $D_{ex}$ des deux raies est 2.59 GHz FWHM. Elle est reliée à la largeur du laser $L$ et à la largeur d'absorption Doppler des atomes $D$ par la relation $D_{ex}^2 = L^2 + D^2$.

la largeur Doppler et de la largeur $L$. En supposant pour simplifier une distribution spectrale gaussienne $\mathrm{P}_{las}(\nu)$ de l'énergie du laser, on peut écrire :

$$\mathrm{P}_{las}(\nu) = \frac{P_{tot}}{L\sqrt{\pi}} \exp(-\nu^2/L^2) \tag{1.5}$$

avec $P_{tot}$ la puissance totale du laser.

La largeur expérimentale d'absorption des atomes d'hélium-3 en faisant un balayage en fréquence du laser est $D_{ex} = 2.59$ GHz FWHM. Elle est reliée à la largeur du laser $L$ et à la largeur d'absorption Doppler des atomes $D = 2$ GHz FWHM (à 300 K) par la relation $D_{ex}^2 = L^2 + D^2$ : on trouve alors $L \simeq 1.64$ GHz FWHM, ce qui est compatible avec la largeur donnée par le fabricant (1.7 GHz).

On peut définir la puissance efficace $\mathrm{P}_{las}$ qui se déduit de $P_{tot}$ en prenant en compte la moindre absorption par les ailes de la distribution Doppler :

$$P_{las} =< \mathrm{P}_{las}(\nu) \exp(-\nu^2/D^2) >= \frac{P_{tot}}{L\sqrt{\pi}} \int d\nu \exp(-\nu^2(1/L^2 + 1/D^2)$$

soit :

$$P_{las} = P_{tot} \frac{1}{\sqrt{1 + L^2/D^2}} \tag{1.6}$$

Pour déposer le maximum de puissance dans le gaz, le laser doit donc avoir une largeur suffisamment faible par rapport à la largeur Doppler des atomes. Avec le laser à fibre pour lequel $L \simeq 1.64$ GHz FWHM, on a $P_{las} \simeq 0.773 \times P_{tot}$ . Par contre, pour permettre un bon recouvrement spectral et obtenir un pompage optique efficace, on souhaite au contraire avoir un laser aussi large que possible. Pour estimer $X_S$, on peut calculer la fraction des atomes de la distribution Doppler pour lesquels la puissance laser est $\geqslant P_{las}(0)/2$ : la densité spectrale calculée $X_S^{calc}$ est la fraction de l'aire de la gaussienne de largeur $D$ pour laquelle $|\nu| \leqslant 2L\sqrt{\log 2}$. On a représenté sur la figure (1.10) la variation de $P_{las}/P_{tot}$ et $X_S^{calc}$ en fonction

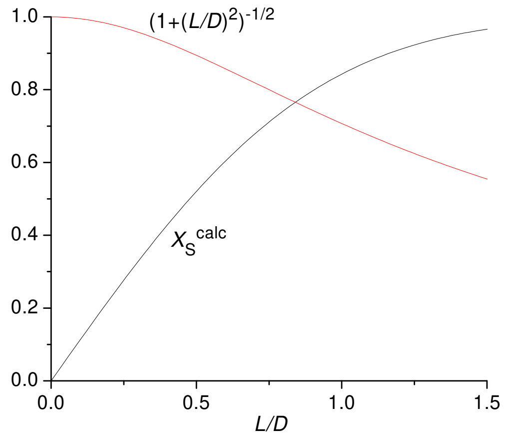


FIG. 1.10 – Variation avec $L/D$ de $P_{las}/P_{tot}$ et du $X_S$ calculé ($X_S^{calc}$).

de $L/D$. Un compromis entre les deux conditions requises pour un laser efficace se situe autour de $L \sim D$.

### 1.3.5 Expériences de pompage optique

Nous décrivons ici les résultats d'une série d'expériences ayant permis de comparer les performances du pompage optique d'un laser monomode 0.5 W (diode DBR, SDL+ amplificateur à fibre, IRE Polus) et du laser 2 W de 1.64 GHz de largeur (oscillateur B et amplificateur à fibre, Keopsys). Le principe de l'expérience est représenté sur le schéma de la figure (1.11). Le faisceau est étendu par un

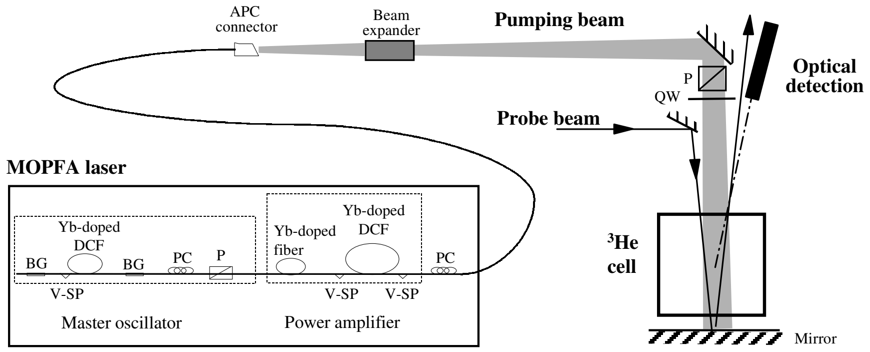


FIG. 1.11 – Montage expérimental utilisé pour mesurer les taux de pompage optique dans un gaz d'hélium-3. Le faisceau de pompage polarisé circulairement (P : polariseur et QW : lame quart d'onde) est colinéaire à un champ magnétique statique de l'ordre de 2 milliTesla. Sur la gauche de la figure, un schéma représente les éléments de la source laser à fibres dopées Ytterbium 2 W développée par la société Keopsys.

télescope jusqu'à un diamètre de l'ordre de 2 cm. Il traverse une cellule scellée de 1.06 mbar en pyrex (5 cm de diamètre, 5 cm de long) contenant le gaz à polariser et est renvoyé sur lui-même par un miroir pour augmenter l'efficacité du pompage. Avant d'entrer dans la cellule il est très soigneusement polarisé circulairement par un cube polariseur suivi d'une lame quart d'onde. La cellule est placée dans un champ magnétique statique $B_0$ de l'ordre de 2 mT.

La polarisation des noyaux de l'hélium est mesurée par une méthode optique décrite dans [Pinard et al, 74] qui consiste à mesurer le taux de polarisation circulaire de la raie $3^1$D-$2^1$D de l'hélium à 667.8 nm émise par la décharge : on utilise ici le fait que l'orientation nucléaire des atomes portés par la décharge dans divers niveaux excités est partiellement transformée, sous l'effet du couplage hyperfin, en orientation électronique. Cette orientation électronique est proportionnelle à l'orientation nucléaire initiale : on trouvera dans [Pinard et al, 74], [Bigelow et al, 92] le coefficient de proportionnalité entre la polarisation lumineuse $\mathcal{P}$ et la polarisation nucléaire $M$ dans l'état fondamental. La précision relative de cette mesure de $M$ est de l'ordre de $\pm 2\%$ avec une sensibilité meilleure que $10^{-3}$.

Dans chacune de ces expériences, une impulsion RMN de 180° permet de renverser la polarisation nucléaire $M$ lorsqu'elle a quasiment atteint son niveau d'équilibre $M_{eq}$ pour avoir une plus grande dynamique de sa construction en présence du laser de pompage.

Un faisceau laser (délivré par une diode laser DBR) est utilisé pour continuement mesurer l'absorption à 1083 nm, de laquelle on peut déduire la densité $n_S$ des atomes métastables $2^3$S. Il est suffisamment atténué pour ne pas être une source de pompage optique.

La courbe (1.12) est un exemple d'enregistrement de la construction de $M$. Pour une condition de pompage donnée, on peut tirer d'un tel enregistrement des paramètres comme la polarisation nucléaire d'équilibre $M_{eq}$, le temps de construction $\tau_{build}$ de $M$ vers $M_{eq}$ et de relaxation $(T_{relax})_{déch}$ de $M$ dans le plasma en l'abscence de lumière de pompage.

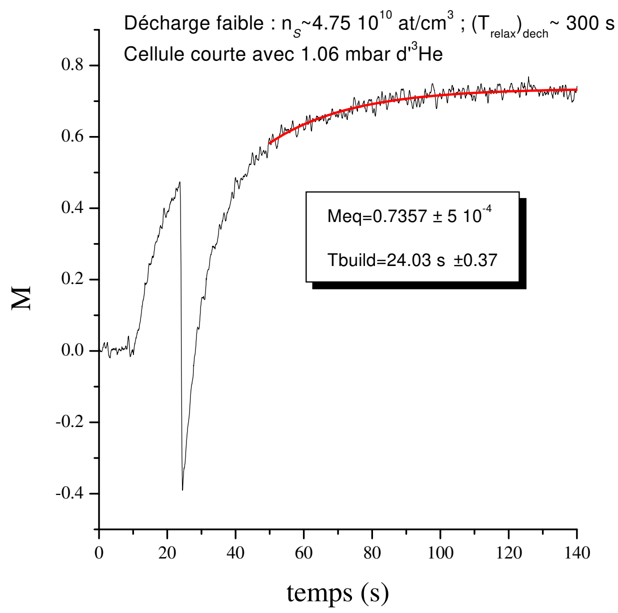


FIG. 1.12 – Exemple d'enregistrement de cinétique de pompage optique. A t=10 s, on commence le pompage. A t=23 s, on applique une impulsion RMN de 180° qui renverse $M$ lorsqu'elle a quasiment atteint $M_{eq}$ : on observe une dynamique de $M$ de $-M_{eq}$ à $M_{eq}$. Pour une puissance laser de 1.02 W avec le laser à fibres sur $C_8$, on trouve $M_{eq} = 73.57\%$, $\tau_{build} = 24.03$ s et $(T_{relax})_{déch} \sim 300$ s.

La polarisation nucléaire atteint $M_{eq}$ presque exponentiellement, avec une constante de temps $\tau_{build}$. Sur le graphe (1.13), on a représenté l'écart par rapport à l'asymptote de $M$ en échelle semi-log pour l'enregistrement (1.12). Quelles que soient les conditions de pompage dans ce type d'expérience, on a un comportement quasi-exponentiel en fin de pompage, ce qui permet de définir une constante de temps caractéristique $\tau_{build}$.

Les valeurs de $M_{eq}$ et $\tau_{build}$ dépendent des paramètres du laser et de l'intensité de la décharge. Expérimentalement, on a une reproductibilité des mesures à mieux que 2% pour $M_{eq}$ et de 2 à 10% pour $\tau_{build}$.

Nous avons entrepris des mesures systématiques pour diverses conditions de pompage optique : niveaux de décharge (proche du seuil d'extinction, forte ou intermédiaire) caractérisés par le temps de relaxation $(T_{relax})_{déch}$, densités de puis-

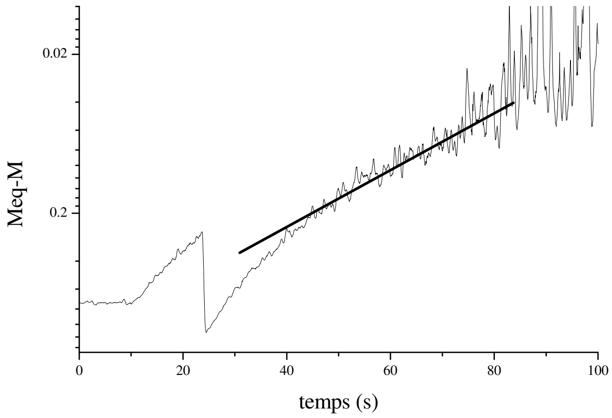


FIG. 1.13 – Ecart par rapport à la polarisation d'équilibre pour l'enregistrement (1.12) avec une puissance laser de 0.5 W sur $C_8$. La constante de temps obtenue (voir texte) est $\tau_{build} = 24.03$ s.

sance laser (en faisant varier la puissance du laser pour une taille de faisceau donné) et raie de pompage ($C_8$ ou $C_9$). Nous avons aussi utilisé une cellule scellée avec la même pression mais trois fois plus longue (15 cm) pour étudier en particulier l'effet de la diffusion multiple (réabsorption de la lumière d'émission spontanée).

De la mesure d'absorption du faisceau sonde, on peut déduire la densité des atomes métastables $n_S$ [2]. Dans nos expériences on a pour la décharge la plus faible $n_S \simeq 5.14 \times 10^{10}$ at/cm$^3$ et pour la décharge la plus forte 3 fois plus d'atomes métastables. Sur la courbe (1.14), on a enregistré la variation de l'absorption, donc

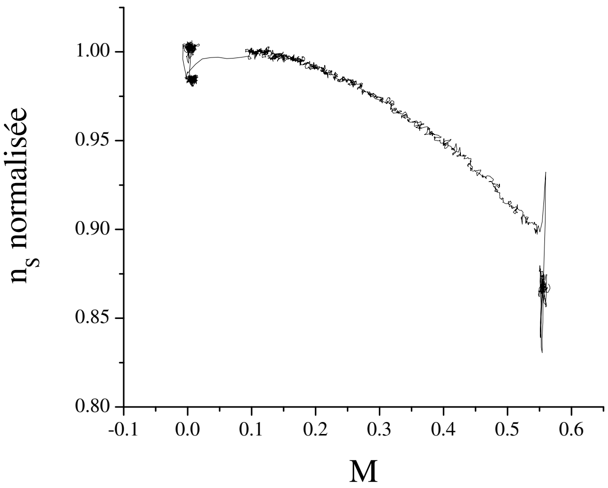


FIG. 1.14 – Variation de la densité de métastables $n_S$ en fonction $M$ au cours d'une relaxation de la polarisation.

de la densité de métastables, avec la décroissance de la polarisation nucléaire $M$

[2] une absorption de 1.36%/cm sur C9 dans le régime linéaire correspond à une densité de métastables $3.22\times10^{10}$ at/cm$^3$.

dans le plasma. On a une variation n'excédant pas 10% pour $M \sim 60\%$ : cela permet de confirmer que l'hypothèse d'une densité constante de métastables dans le modèle de pompage optique est raisonnable.

### Temps de pompage

Sur la courbe (1.15), on a représenté pour trois niveaux de décharge, et deux puissances lasers de 0.5 et 1 W, les temps de pompage $\tau_{build}$ pour les raies $C_8$ et $C_9$.

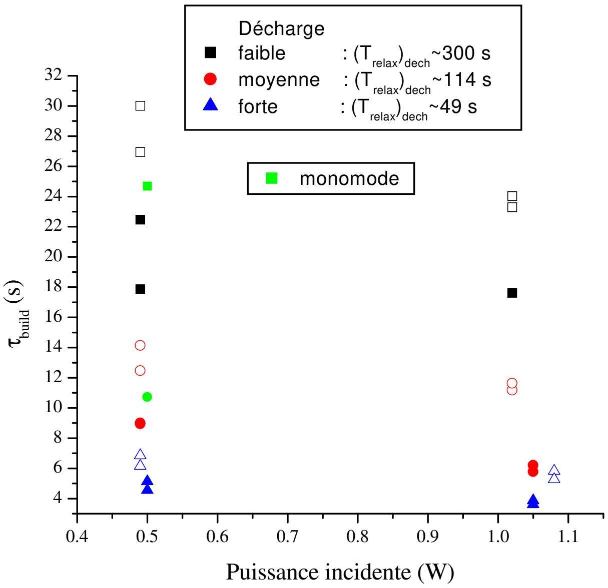


FIG. 1.15 – Résultats de $\tau_{build}$ pour $C_8$ (symboles ouverts) et $C_9$ (symboles pleins) pour différentes décharges.

Les temps de pompage sont toujours plus courts pour la puissance la plus importante, mais aussi pour la raie $C_9$ que $C_8$. Ceci peut-être relié à la plus grande force d'oscillateur de $C_9$ (1.27 fois supérieure [Nacher et al, 85]).

Plus la décharge est forte, plus courts sont les temps de pompage. En fait, augmenter le niveau de décharge permet d'avoir des densités d'atomes métastables plus importantes et donc d'absorber plus de lumière. Par contre plus la décharge est forte et plus la relaxation de $M$ est importante à cause de collisions plus fréquentes avec d'autres espèces dans le plasma. Cette augmentation contribue à accélérer encore le pompage optique, mais limite plus sévèrement la polarisation d'équilibre atteinte comme on va le voir.

### Polarisations d'équilibre

Sur la courbe (1.16), on a représenté pour trois niveaux de décharge, et deux puissances lasers de 0.5 et 1 W, les polarisations d'équilibre pour un pompage avec les raies $C_8$ et $C_9$.

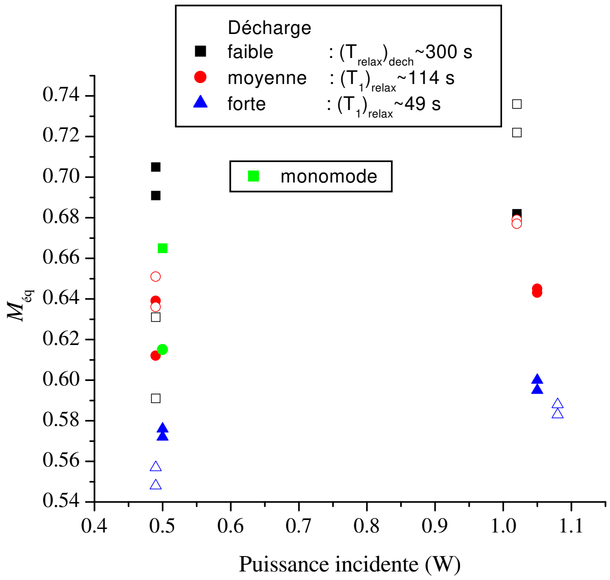


FIG. 1.16 – Résultats de $M_{eq}$ pour $C_8$ (symboles ouverts) et $C_9$ (symboles pleins) pour différentes décharges.

On a toujours des polarisations d'équilibre plus importantes pour des puissances laser plus fortes car on dépose plus de photons polarisés donc plus de moment cinétique. Ceci est conditionné par la bonne polarisation circulaire des faisceaux lumineux, car un peu de polarisation circulaire opposée à celle du pompage serait catastrophique (voir figure 1.3).

La raie $C_8$ est toujours la plus performante. Ceci est compatible avec les prévisions du modèle pour nos conditions expérimentales.

Plus la décharge est faible et plus grandes sont les polarisations d'équilibre : la relaxation plus lente fait plus que compenser la perte d'absorption.

### Taux de production d'aimantation

Pour la production de gaz polarisé, le rythme de production du gaz et la quantité d'aimantation obtenus par unité de temps en régime dynamique peuvent être plus importants que la valeur de la polarisation d'équilibre en régime stationnaire. On peut introduire comme dans [Stoltz et al, 96, 1] un taux de production de densité d'aimantation $PM_{eq}/\tau_{build}$ ($P$ est la pression du gaz).

On a reporté sur la courbe (1.17), les résultats précédents pour $M_{eq}/\tau_{build}$ car ici la pression est constante. Le taux de production est toujours meilleur pour des décharges fortes, même si les polarisations d'équilibre sont plus faibles, les temps de pompage sont quant à eux toujours beaucoup plus courts et on a un bilan net de rythme de production plus important.

En ce qui concerne la cellule trois fois plus longue, on a trouvé sensiblement les mêmes résultats en terme de densité d'aimantation qu'avec la cellule courte à paramètres de pompage identiques. Ceci montre l'intérêt de l'utilisation de cellules

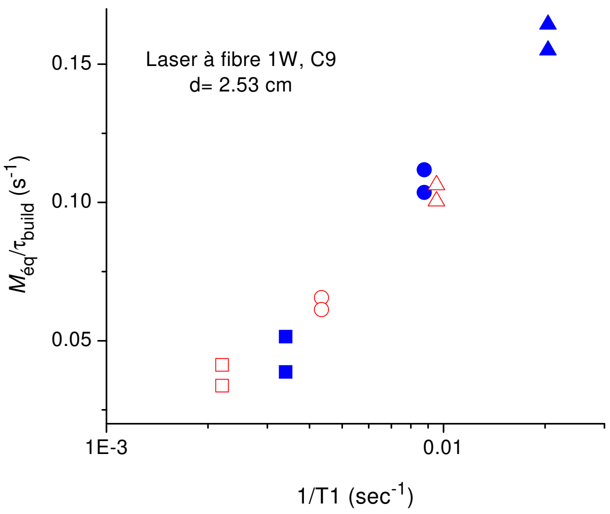


FIG. 1.17 – Taux de production d'aimantation pour une cellule de 1.06 mbar. Le pompage est effectué sur $C_9$ en cellule courte (76 cm$^3$, symboles pleins) et longue (230 cm$^3$, symboles pleins) pour différentes décharges.

plus longues pour obtenir une aimantation totale plus élevée, dans la perspective de la production de gaz polarisé pour les applications médicales. On utilise en effet de manière plus efficace la lumière du laser de pompage, peu absorbée par unité de longueur. Ceci montre également que les conclusions des expériences effectuées en cellule courte sont en fait très générales.

Remarque : un fait surprenant a été révélé par toutes ces mesures. Les résultats de cinétique de pompage optique sont tout à fait comparables pour le laser monomode (diode amplifiée) et pour le laser à fibre Keopsys large. Compte tenu de la largeur spectrale mesurée pour le laser à fibre (1.64 GHz, recouvrant assez bien le profil Doppler, conduisant à un $Xs$ proche de 1) on s'attendrait à une plus grande efficacité pour le pompage optique. C'est pour analyser directement cette question et tenter de comprendre pourquoi la performance du laser à fibre est en fait identique à celle d'un laser monomode que nous avons entrepris d'en faire une analyse spectrale résolue en temps.

## 1.4 Analyse spectrale directe de différents lasers à 1083 nm

Cette analyse a consisté à enregistrer la lumière transmise par un interféromètre Fabry-Pérot (plan-convexe) de 1.5 GHz d'intervalle spectral libre et ayant une finesse de l'ordre de 100, donc une largeur de pic d'Airy de 15 MHz comparable à la largeur atomique (hors largeur Doppler) (figure 1.18).

La réponse temporelle de la détection (photodiode Centronic OSD5-4X polarisée en inverse avec une résistance de 50 Ω de charge) a été testée en enregistrant le signal lorsque la source laser est une diode laser wobulée à quelques MHz. Le

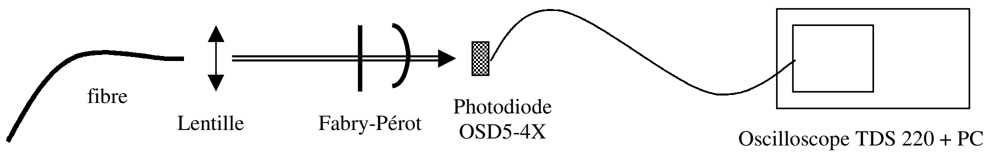


FIG. 1.18 – Schéma de l'expérience pour la caractérisation spectrale directe du laser Keopsys 2 W. La bande passante spectrale de l'interféromètre Fabry-Pérot est de l'ordre de 15 MHz ; le temps de réponse électronique de mesure de la puissance transmise est inférieur à la $\mu$sec.

temps de montée est $< 0.2$ $\mu$s, le temps de descente (à 1/e) est de l'ordre de $0.2 - 0.5$ $\mu$s. Ceci représente un majorant du temps de réponse du système, qui est assez comparable à celui des atomes à une pression de 1.33 mbar.

Sur la figure (1.19), on présente différents enregistrements de la transmission de la lumière lorsque la source lumineuse est le laser à fibre 2 W Keopsys (avec l'oscillateur B) : le signal enregistré se compose d'une succession de pics brefs sur un fond quasi-nul.

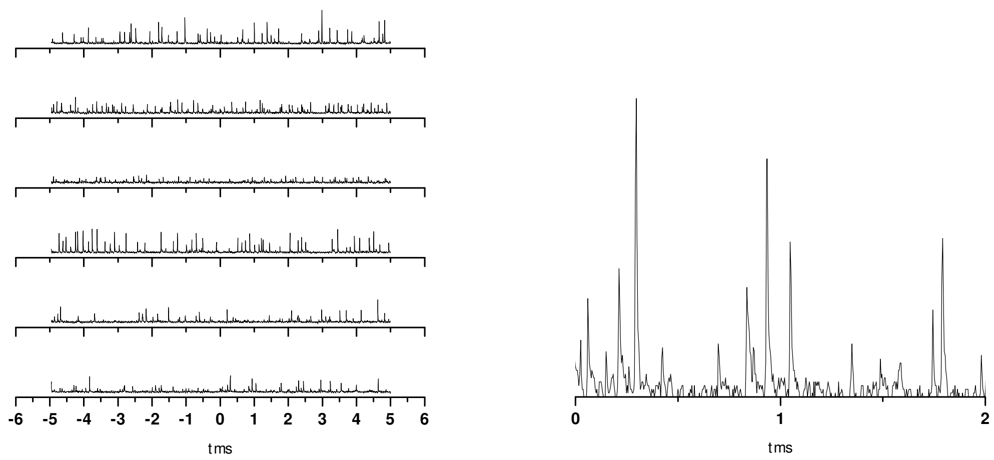


FIG. 1.19 – Série d'enregistrements de la lumière du laser Keopsys 2 W transmise par le Fabry-Pérot. Les échelles verticales sont les mêmes pour tous les enregistrements. (à droite un des enregistrements est dilaté).

Les caractéristiques temporelles du signal mesuré sont une succession aléatoire de brèves périodes de transmission de la lumière et de plus longues périodes où cette lumière est quasi totalement bloquée. La figure (1.20) donne un exemple d'analyse statistique de ces variations : on trouve une durée moyenne d'allumage de $6 - 7$ $\mu$sec avec un rapport cyclique de 3%.

A ce stade, notre conclusion est que le laser reste sur une fréquence donnée (à la largeur de l'interféromètre près) pendant un temps de l'ordre de 5 à 15 $\mu$s le plus souvent, et n'y reste qu'une faible fraction du temps. S'il était à tout instant monochromatique, avec un tirage aléatoire de fréquence dans 1.5 GHz FWHM, il faudrait conclure du rapport cyclique d'allumage (3%) que la bande passante de

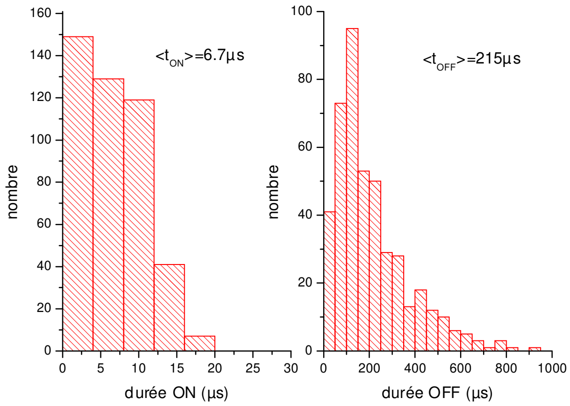


FIG. 1.20 – Histogrammes des durées d'allumage ("ON", à gauche) et d'extinction ("OFF", à droite) du faisceau transmis pour un ensemble d'enregistrements du type de ceux de la figure (1.19). La durée moyenne d'allumage est de 6 à 7 $\mu$sec avec un rapport cyclique de 3%.

l'interféromètre serait $1500 \times 3\% = 45$ MHz, et donc sa finesse réelle $1500/45 = 33$ au lieu de 100 en principe. Peut être le laser est-il faiblement multifréquence (au maximum $100/33 = 3$ fréquences simultanées), peut-être la finesse effective est-elle inférieure (mauvais alignement ou miroirs sales), ou peut-être y a-t-il une combinaison de ces deux effets.

Des essais comparables ont été effectués avec un laser LNA, l'autre source laser de puissance habituellement utilisée pour le pompage optique de l'hélium. L'émission se fait sur un grand nombre de modes (transverses) de la cavité laser [Aminoff et al, 89]. L'analyse de fréquence au moyen du dispositif de la figure (1.18) conduit à des enregistrements tout à fait différents de ceux obtenus avec un laser à fibre (figure 1.21) : on observe d'importantes fluctuations de la puis-

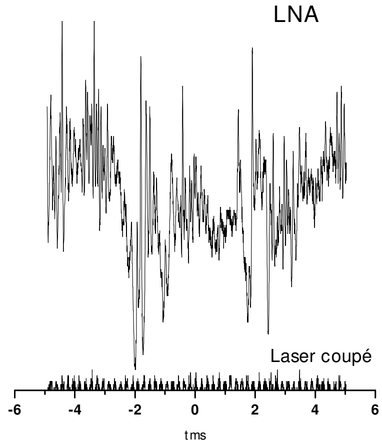


FIG. 1.21 – Analyse spectrale résolue en temps du faisceau émis par le laser LNA. Il y a des fluctuations de la puissance mais pas de fonctionnement intermittent à très faible rapport cyclique comme le laser à fibre.

sance émise dans une bande de fréquences données, mais pas le fonctionnement intermittent à très faible rapport cyclique du laser à fibre.

En conclusion, nous avons montré que l'oscillateur fibré inclus dans le laser à fibre Keopsys délivre en fait une fréquence unique (ou un très petit nombre de modes simultanés) à chaque instant (un seul mode transverse bien sûr, mais aussi un seul mode longitudinal ou un très petit nombre de tels modes), dont la fréquence glisse ou saute pour " arroser " à long terme la largeur Doppler $D$, mais avec un temps de cohérence de l'ordre de $5-15$ $\mu$s et une période de récurrence de l'ordre de 200 $\mu$s.

La société Keopsys a très récemment résolu ce problème. Sur la figure (1.22), nous avons un enregistrement de la lumière transmise par le même Fabry-Pérot d'une nouvelle version du laser 2 W (prototype incluant un oscillateur de version C) : il remplit toute la fenêtre spectrale et ne présente pas le fonctionnement intermittent du laser à fibre précédent.

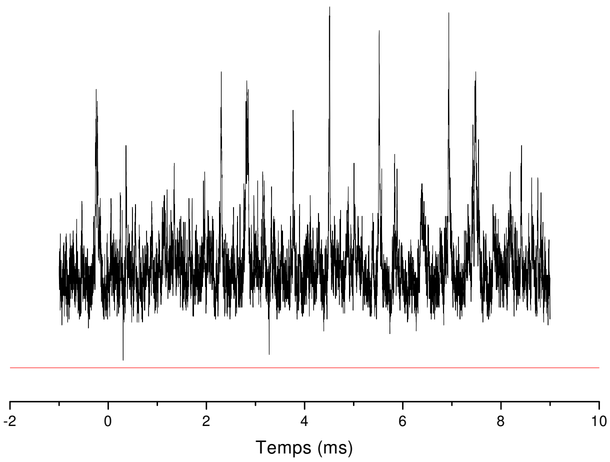


FIG. 1.22 – Exemple d'enregistrement de la lumière transmise par le Fabry-Pérot pour le prototype de laser Keopsys 2 W qui a un oscillateur de version C. Le trait horizontal représente l'extinction totale (laser coupé).

Il a été découvert [article LKB/Keopsys en préparation] que la compétition entre modes longitudinaux dépend crucialement de la distance au seuil d'oscillation. Le courant de pompage de l'oscillateur est maintenant plus que deux fois plus important que sur la version antérieure : cela permet l'émergence d'un quasi-continuum de modes dans le profil Doppler. Les mesures de pompage optique seront reprises lorsque nos lasers auront été modifiés, et nous espérons pouvoir confirmer que les performances seront améliorées et similaires à celles d'un laser LNA de même puissance.

Remarque : on sait que le laser LNA, de part sa structure hautement multimode, est bien adaptée au pompage optique de l'hélium. On pourrait alors être tenté de l'utiliser comme oscillateur laser et de le combiner avec un amplificateur de puissance à fibre qui est en général monomode. Nous avons donc effectué un filtrage spatial du faisceau émis par le LNA, en l'injectant au coeur d'une fibre optique monomode (sélection du mode $TE_{00}$) ; l'analyse spectrale du faisceau transmis par la fibre fait apparaître les mêmes intermittences qui révèlent une émission instable mais spectralement étroite à tout instant, figure (1.23). La sélection d'un seul mode transverse de ce laser le rend donc inadapté à un pompage optique optimal. Il serait donc délicat d'injecter un étage d'amplification de puissance à fibre optique à partir d'un oscillateur LNA de puissance modeste.

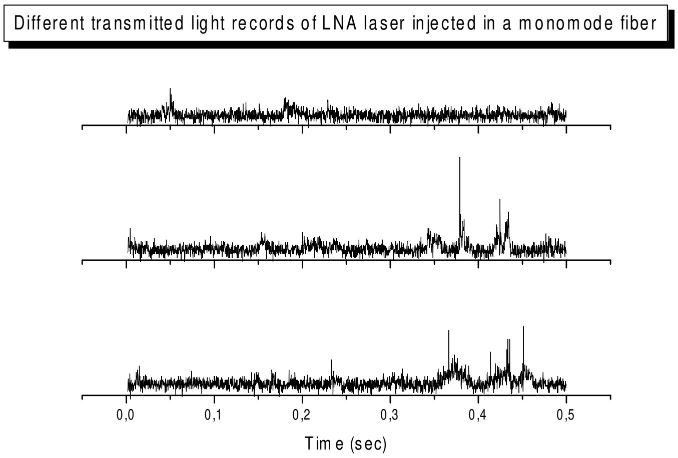


FIG. 1.23 – Analyse spectrale résolue en temps du faisceau émis par le laser LNA injecté dans une fibre monomode. On a de nouveau un fonctionnement intermittent avec un faible rapport cyclique.

## 1.5 Absorption de la lumière à 1083 nm et effets de saturation

Le pompage optique de l'hélium est un processus complexe où les phénomènes de relaxation jouent un rôle important. Une situation plus simple et comportant moins de paramètres mal connus consiste à imposer une très forte relaxation du fondamental qui maintient $M = 0$. Nous avons effectué des mesures comparées de l'absorption de différents types de lasers à 1083 nm pour caractériser l'absorption d'un faisceau dans des conditions où on pourra tester des hypothèses du modèle. Ceci nous à conduit à définir des critères expérimentaux permettant de déterminer quantitativement l'adéquation d'une source laser à un pompage optique performant en terme de temps de pompage et de polarisation maximale atteinte.

Les effets de saturation optique de la transition atomique, qui ont pour conséquence une diminution de l'absorption de la lumière de pompage, peuvent être estimés en comparant la probabilité par unité de temps d'absorption d'un photon par un atome ($1/\tau_{abs}$), et celle d'émission spontanée ($1/\tau$). $1/\tau_{abs}$ est proportionnel à l'intensité par unité de surface $I/S$ du laser [Nacher et al, 85] :

$$1/\tau_{abs} = \sqrt{\pi}\frac{\alpha f}{m\omega D} X_S T_{ij} I/S \tag{1.7}$$

tandis que :

$$1/\tau = \frac{2\alpha\omega^2\hbar}{3mc^2} f. \tag{1.8}$$

En définissant l'intensité critique de saturation $I_{sat}$ où ces effets deviennent significatifs comme étant telle que $\tau = \tau_{abs}$ on obtient :

$$\frac{I_{sat}}{S} = \frac{2\omega^3\hbar D}{3\sqrt{\pi}c^2}\frac{X_S}{T_{ij}} = 0.277\frac{X_S}{T_{ij}} \text{ (Watt/cm}^2\text{)}. \tag{1.9}$$

Cette intensité de saturation dépend du paramètre $X_S$. Par exemple, si toute la puissance est concentrée sur la largeur spectrale d'une seule classe de vitesses ($Xs \sim 1\%$), on trouve 10 mW/cm$^2$ pour $C_8$ (polarisation circulaire, $T_{ij} = 0.29$) au lieu de $\sim 1$ W/cm$^2$ pour un laser spectralement étalé sur toute la largeur Doppler ($Xs = 1$).

Plus précisément, nous avons représenté sur le graphe (1.24) différentes courbes calculées au moyen du modèle de pompage optique pour obtenir la saturation de l'absorption en imposant $M = 0$ obtenues pour différentes valeurs du recouvrement spectral $X_S$ et différentes polarisations de la lumière incidente.

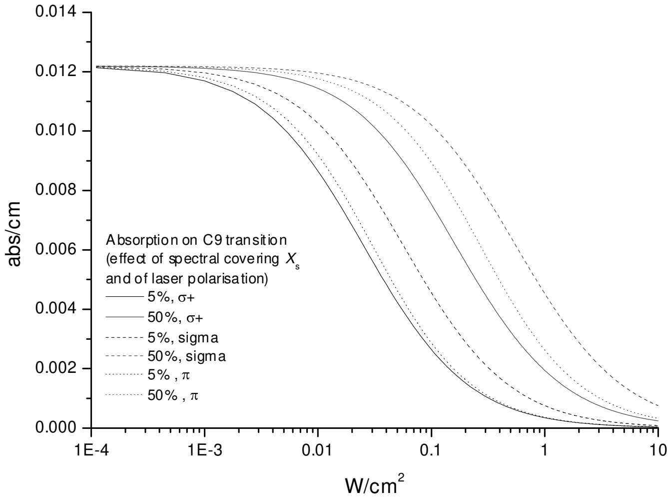


FIG. 1.24 – Courbes calculées d'absorption de la lumière en fonction de la densité de puissance pour différentes polarisations et recouvrement spectral.

La mesure expérimentale de l'absorption sur une grande plage de valeurs de $I/S$ doit d'une part permettre de tester si les effets de saturation sont qualitativement bien décrits par le modèle de pompage optique reposant sur le seul paramètre $X_S$, et d'autre part d'évaluer ce paramètre. De toutes façons, l'absorption de lumière (polarisée) est un point clé du pompage optique, et sa caractérisation directe en situation réaliste fournit une information importante.

### 1.5.1 Wobulation d'une diode laser

Nous avons d'abord étudié le changement d'absorption de la lumière d'une diode laser monomode amplifiée dont on wobule rapidement la fréquence d'émission en modulant son courant d'injection.

Nous avons enregistré la transmision d'un interféromètre Fabry-Pérot (plan-convexe) de 1.5 GHz d'intervalle spectral libre avec une photodiode. La tension de commande de la céramique piezo-électrique qui permet de balayer la transmission de ce Fabry-Pérot est modulée en triangle, à faible fréquence ($\simeq$ 20 Hz). La calibration en fréquence du balayage est obtenue en enregistrant l'écart de deux pics de transmission à fréquence laser fixe. Les mesures ont été effectuées en modulant ensuite le courant d'alimentation de la diode laser à différentes amplitudes et fréquences.

La figure (1.25) donne un exemple de la variation des pics de transmission en

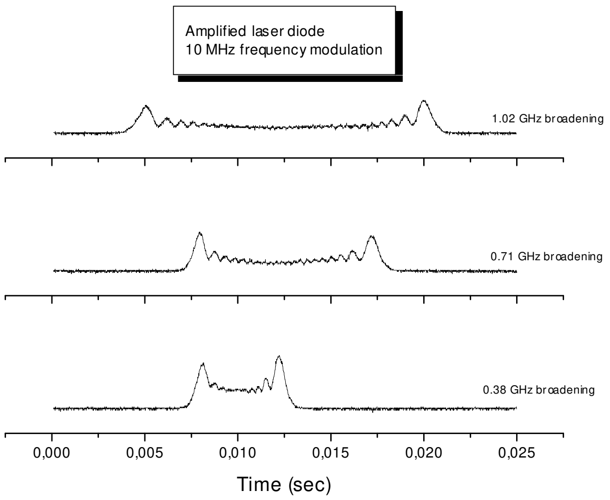


FIG. 1.25 – Elargissement, jusqu'à $\sim$ 1 GHz, du spectre d'émission d'une diode laser amplifiée, obtenu en modulant son courant d'injection (ici la fréquence de modulation est de 10 MHz).

fonction de l'amplitude de modulation. Un élargissement de l'ordre d'une fraction de largeur Doppler est facilement obtenu. Malgré la modulation en triangle du courant, on peut noter que la wobulation obtenue est proche de celle que donnerait une modulation en sinus en raison de la bande passante limitée de la réponse de la diode laser.

Sur la figure (1.26), on peut voir le schéma du montage expérimental utilisé pour les mesures d'absorption. Divers degrés d'atténuation et de focalisation du faisceau ont permis de faire varier la densité de puissance lumineuse incidente jusqu'à 0.8 W/cm$^2$. Pour se placer dans les conditions typiques de pompage optique, le laser est accordé sur la transition $C_9$ et la pression de la cellule est de 1.33 mbar. On a choisi une polarisation $\sigma$ du faisceau laser pour privilégier les effets de saturation de la transition optique par rapport aux effets de polarisation des atomes métastables. Un aimant permet de maintenir une polarisation nucléaire $M$ nulle en faisant un fort gradient qui induit une relaxation rapide (discussion dans 1.3.1).

Sur les graphes (1.27), on peut voir qu'une modulation à 1 MHz de la fréquence d'émission du laser ne change pas le profil d'absorption et ce quel que soit l'élargissement spectral. Par contre, pour une modulation à 10 MHz, on repousse

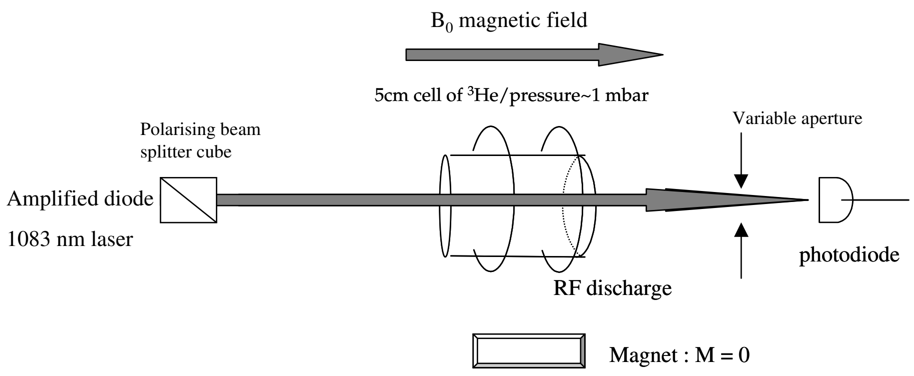


FIG. 1.26 – Schéma du montage pour la mesure de l'absorption d'une diode wobulée. Un aimant permet de maintenir une polarisation nucléaire nulle dans le fondamental. La lumière est polarisée linéairement pour réduire les effets de surpolarisation du métastable.

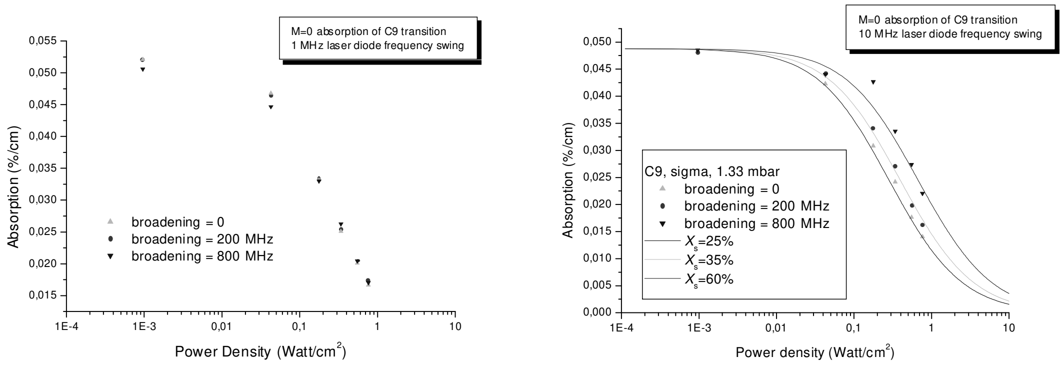


FIG. 1.27 – Absorption et effets de saturation d'une diode wobulée à différentes fréquences et avec différents élargissements spectraux.

la saturation de l'absorption (jusqu'à un facteur 2 avec un élargissement spectral de 0.8 GHz).

Ces résultats confirment directement les expériences de pompage optique de [Stoltz et al, 96, 2] où une wobulation à 10 MHz avec des excursions en fréquence comparable à $D$ augmente sensiblement les polarisations d'équilibre atteintes.

La fréquence de 10 MHz où on observe des effets de dé-saturation de l'absorption est à comparer au taux d'amortissement de la cohérence optique $\Gamma_n/2\pi$ = 1.6 MHz : pour un atome d'une classe de vitesse donnée, tout se passe comme s'il était soumis à une puissance appliquée quasi-continue.

Alors que l'on trouve une assez bonne compatibilité entre les résultats expérimentaux et les calculs pour un élargissement de 0.8 GHz avec un $X_S = 60\%$, on trouve cependant pour décrire les effets de saturation de l'absorption pour le laser monochromatique sans élargissement, un $X_S = 25\%$ alors que l'on s'attendrait à un $Xs \sim 1\%$ (voir discussion précédente). Nous verrons au chapitre (1.5.3) que pour interpréter ces mesures de saturation de l'absorption, une description naïve de la saturation avec un modèle à deux niveaux comme nous l'avons fait précédemment ne suffit plus (1.5) et qu'il faut tenir compte d'une part des effets d'élargissement radiatif et d'autre part des effets de redistributions collisionnelles dans l'hélium, notamment avec l'échange de métastabilité.

Remarque : la wodulation appliquée nous a permis de démontrer simplement l'importance de l'effet de l'élargissement spectral et de la fréquence de modulation du laser sur l'absorption par les atomes. Pour obtenir une efficacité maximale, à puissance laser donnée, une modulation en sinus n'est cependant pas la mieux adaptée puisqu'on passe alors plus de temps sur les bords de la plage de modulation, c'est-à-dire loin dans les ailes du profil Doppler.

### 1.5.2 Comparaison des deux versions de lasers à fibre 2 W

Nous avons effectué une mesure comparée de l'absorption par un gaz d'hélium à polarisation nucléaire nulle de la lumière des deux lasers à fibre Keopsys (oscillateur B et C) dont l'analyse spectrale directe a montré des caractéristiques très différentes. Le principe du montage de cette expérience est le même que celui de la figure (1.26). Divers degrés d'atténuation et de focalisation du faisceau ont permis de faire varier la densité de puissance lumineuse incidente jusqu'à 80 W/cm$^2$. Les lasers sont accordés sur la transition $C_9$. Les mesures sont effectuées sur la même cellule avec le même niveau de décharge.

Sur la figure (1.28), on peut clairement observer des comportements différents pour les deux lasers. A forte densité de puissance, le "nouveau" laser (prototype

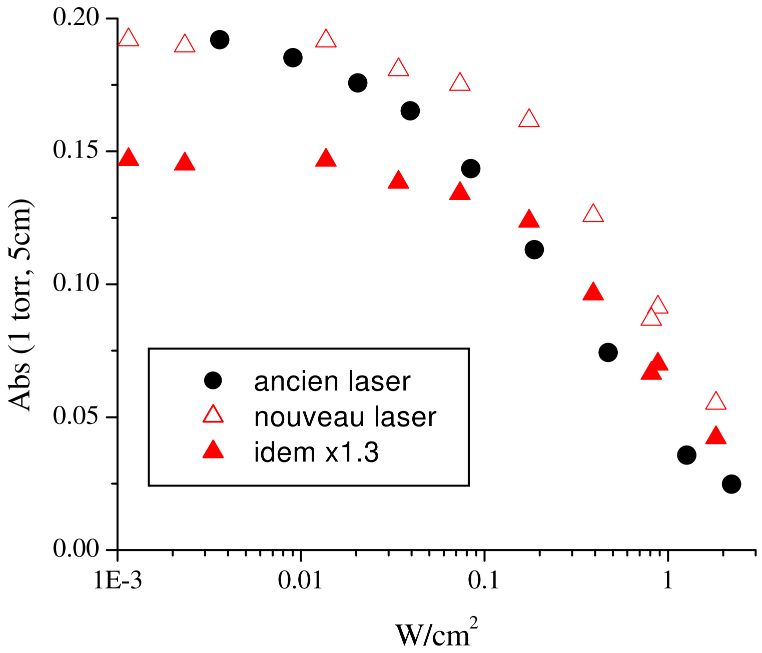


FIG. 1.28 – Comparaison des effets de saturation sur l'absorption des deux lasers à fibre 2 W (voir texte).

avec l'oscillateur de version C) sature moins que la version antérieure, ce qui est particulièrement visible lorsque l'on normalise l'absorption du nouveau laser à basse puissance (triangles ouverts). Ceci est la confirmation des résultats de l'analyse spectrale directe : un quasi-continuum de modes dans le profil Doppler qui permet de distribuer la puissance spectrale du laser et donc d'augmenter son absorption à densité de puissance totale donnée.

On remarque par contre que pour les faibles densités de puissance, le "nouveau" laser est moins absorbé que le précédent (facteur de 1/1.3). Nous avons réalisé un profil d'absorption des raies $C_8$ et $C_9$ par balayage de la fréquence du laser (figure 1.29), dont on déduit comme précédemment une largeur du laser $L \simeq 2.4$ GHz

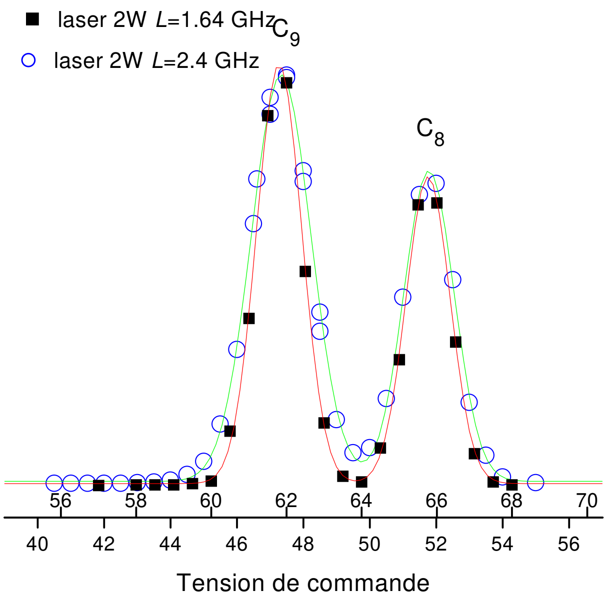


FIG. 1.29 – Comparaison de balayages $C_8$-$C_9$ avec les deux lasers à fibre 2 W, révélant une largeur supérieure pour le "nouveau" laser.

(FWHM), plus large que le profil Doppler. En utilisant la formule (1.6), on retrouve quantitativement le rapport des absorptions observées à faible densité de puissance pour ces deux lasers.

### 1.5.3 Conclusions et perspectives ; mesures d'absorption saturée

Par des approches différentes, nous avons en fait abouti à des estimations très différentes de $X_S$ pour les deux types de lasers utilisés.

D'une part le rapport $\Gamma/D$ conduit à une estimation théorique $X_S \sim 1\%$ pour un laser monomode. Cette estimation est d'ailleurs confortée par les mesures à puissance modérée de [Nacher et al, 85].

D'autre part les mesures de saturation de l'absorption à $M = 0$, si elles révèlent bien une dépendance vis à vis de la structure spectrale du laser, conduisent à des valeurs bien supérieures de $X_S$ pour décrire la saturation à forte intensité laser, même pour un laser monomode (1.25).

Pour essayer de concilier ces observations, on peut tenter de prendre en compte les effets d'élargissement radiatif dans la classification des atomes qui conduit à définir le paramètre $X_S$. Afin de disposer d'éléments quantitatifs pour établir une telle classification, nous avons réalisé diverses mesures des corrélations vitesse/orientation par des techniques d'absorption saturée.

Sur la figure (1.30), on a reporté un balayage $C_8$-$C_9$ d'une expérience classique

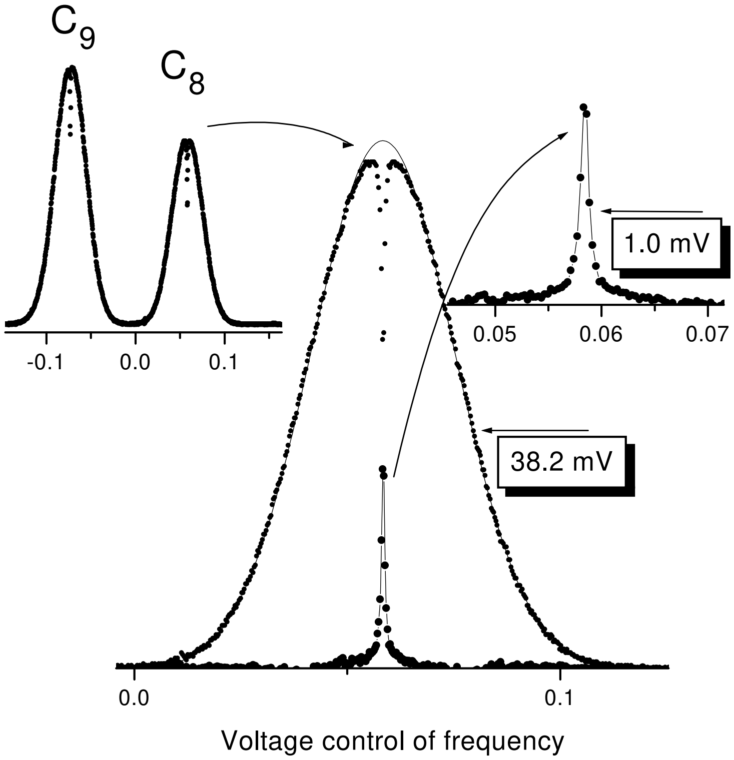


FIG. 1.30 – Exemple de mesure d'absorption saturée à puissance de pompe modérée. L'ensemble des transitions $C_8$-$C_9$ (écart 6.74 GHz) est enregistré. Au centre : détail de la raie $C_8$ (points), avec un ajustement gaussien (courbe fine) et résidu de l'ajustement (pic étroit, représenté dilaté à droite). L'échelle horizontale est la commande en fréquence du laser (51 MHz/mV).

d'absorption saturée avec une diode laser monomode de faible puissance [3]. On voit clairement un pic étroit (quelques MHz) creusé dans le large profil Doppler d'absorption. On peut évaluer un rapport $\Gamma/D$ en comparant les largeurs du pic étroit d'absorption saturée et du profil Doppler : on trouve $\Gamma/D \sim 2.6\%$. Cette valeur est légèrement supérieure à l'estimation théorique $X_S \sim 1\%$ , mais cette différence est peut être due au "jitter" à basse fréquence ($\leq 1$ MHz) de la diode laser.

Nous avons entrepris de généraliser (en champ faible) ces mesures en utilisant

[3]On trouvera de tels exemples de mesure dans la suite, où elles ont été systématiquement utilisées pour mesurer précisément les structures fines, hyperfines et Zeeman de $B = 0$ jusqu'à 0.2 Tesla.

une pompe très intense à fréquence fixe et une sonde indépendante pour mesurer la population de tous les sous-niveaux. Le faisceau laser pompe est ici une diode amplifiée. Le faisceau sonde, issu d'une diode laser indépendante, est superposé à la pompe dans la cellule.

Pour augmenter la sensibilité du signal et travailler sur fond noir, on module à la fois l'amplitude de la pompe avec un chopper mécanique (avec une fréquence $\nu_p \simeq 20$ Hz) et la décharge radiofréquence qui sert à peupler l'état $2^3$S (avec une fréquence $\nu_{dech} \simeq 440$ Hz). Le signal de la photodiode est envoyé sur un premier amplificateur à détection synchrone (ADS) ayant comme référence celle de la modulation décharge radiofréquence ($\nu_{dech}$) et une constante de temps de 10 ms. Le signal de sortie de cet ADS est lui-même envoyé sur un deuxième ADS ayant comme référence celle de la de la pompe ($\nu_p$).

La figure (1.31) montre un exemple d'une mesure préliminaire d'absorption

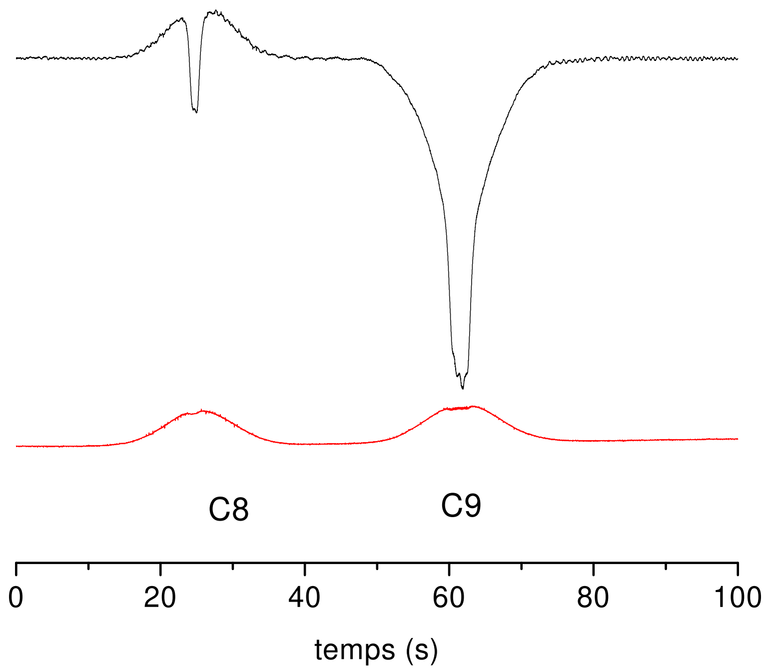


FIG. 1.31 – Exemple d'enregistrement de l'absorption d'une sonde $\sigma_+$ balayée sur $C_8$ puis $C_9$ en présence d'une pompe intense ($\sigma_+$, 1.6 W/cm$^2$) fixe sur $C_9$. Les pics d'absorption saturée (trace du haut) sont plus larges, et les signaux plus complexes que ceux de la figure (1.30). Trace du bas : signal d'absorption à la sortie du premier ADS (voir le texte).

d'une sonde en polarisation $\sigma_+$ enregistrée en balayant sa fréquence entre $C_8$ et $C_9$ en présence d'une pompe intense ($\sigma_+$, 1.6 W/cm$^2$) fixe sur la transition $C_9$. On a deux contributions sur ces courbes : un fond large, gaussien, surmonté d'un pic plus étroit. Ce pic étroit est du à la pompe qui, à la fréquence où elle est fixée, surpolarise la classe de vitesses d'atomes correspondante. Hors de ce pic étroit, on mesure la polarisation des atomes métastables qui n'interagissent pas directement avec le faisceau pompe. On peut attribuer la forme gaussienne large (de largeur $D/\sqrt{2}$) aux collisions d'échange de métastabilité qui redistribuent dans tout le profil de vitesses Doppler des atomes métastables gardant trace de leur surpolarisation.

Nous disposons maintenant d'un outil permettant d'étudier les corrélations entre vitesse et population pour tous les sous-niveaux des états $2^3$S et $2^3$P, en faisant varier la densité puissance de la pompe sur une grande gamme. Une étude systématique a été entreprise pour analyser le passage des valeurs modérées caractéristiques des mesures classiques de la figure (1.30) aux densités de puissances de pompe atteintes aux plus fortes saturations. Son objectif est déterminer si la prise en compte des effets d'élargissement radiatif seront suffisants pour interpréter nos mesures de saturation de l'absorption, ou s'il sera de toutes façons nécessaire d'introduire dans le modèle un traitement plus détaillé et plus réaliste des redistributions collisionnelles ainsi révélées.

# Chapitre 2

# Pompage Optique non-standard

## 2.1 Pompage optique en champ magnétique intense

### 2.1.1 Introduction

L'objet de ce travail est d'examiner l'efficacité de la polarisation par pompage optique de l'hélium-3 dans des conditions non standard, c'est-à-dire en présence de pression et de champ magnétique plus élevés qu'à l'ordinaire. En 1995 sont apparues les premières images par IRM de poumons obtenues avec de l'hélium-3 "hyperpolarisé" par pompage optique. Les conditions standard de pompage optique que nous avons jusque là décrites permettent d'obtenir de très fortes polarisations nucléaires, jusqu'à $\sim 80\%$ [Bigelow et al, 92], mais pour une faible pression d'hélium ($\sim 1$ mbar). L'inhalation d'un tel gaz est évidemment impossible, et sa compression est indispensable pour atteindre la pression atmosphérique. Cette solution est toutefois techniquement délicate à mettre en oeuvre sans perte de polarisation nucléaire. L'ajout d'un gaz neutre pour augmenter la pression est une solution simple et élégante [Darrasse et al, 97], mais qui malheureusement dilue considérablement la concentration du gaz et n'augmente ni la densité d'aimantation, ni le signal RMN utiles à l'imagerie.

Comme il apparaîtra plus bas, l'application d'un champ magnétique d'intensité convenable peut améliorer considérablement l'efficacité du processus de pompage optique dans un gaz d'hélium à des pressions de plusieurs dizaines de millibars : nous avons par exemple montré qu'il est possible d'obtenir une polarisation de 10% pour des pressions allant jusqu'à 40 mbar sous un champ de 0.1 tesla. Ceci a motivé l'étude de l'influence du champ magnétique sur l'efficacité du pompage optique. Une équipe anglaise a étudié sommairement des champs de 0.2 et 0.6 tesla ([Becker et al, 98], [Jones et al, 00]), mais ce sont à notre connaissance les seuls autres travaux réalisés à ce jour sur le pompage en champ intense, pour lequel aucun essai à pression élevée n'a été fait. Dans la perspective du développement d'un système simple et efficace de production sur site de gaz d'hélium polarisé inhalable, nous avons entrepris d'étudier les conditions permettant un pompage optique efficace à pression bien plus importante, afin de simplifier ou supprimer la compression de gaz polarisé.

Un aspect important de l'étude concerne donc la caractérisation expérimentale de tous les processus intervenant dans le pompage optique en fonction du champ magnétique (jusqu'à plus d'un tesla) auquel on soumet les atomes d'hélium :

1. Etude spectrale détaillée de l'effet Zeeman de la transition $2^3$S -$2^3$P de l'hélium-3 (position et intensité de toutes les composantes de structure fine et hyperfine de la transition). L'étude pour le cas plus simple de l'hélium-4 (qui évite la complexité introduite par la structure hyperfine) a été également menée.
2. Etude des modifications des paramètres pertinents pour le pompage optique (densité d'atomes dans le niveau excité métastable $2^3$S , qui est peuplé par décharge radiofréquence dans l'hélium pour permettre le pompage optique, temps de relaxation et de couplage des divers états intervenant dans le processus de pompage optique, ....)
3. Etude de l'influence des caractéristiques de la lumière de pompage optique (puissance, polarisation, distribution spectrale) sur la cinétique et l'efficacité de la construction de polarisation nucléaire.
4. Etude de l'effet de la pression totale du gaz sur les résultats précédents.

L'objectif de ce programme est d'arriver à une compréhension satisfaisante des importantes modifications qu'entraîne l'application d'un champ magnétique intense ainsi que l'amélioration qui en résulte pour l'efficacité du pompage optique, et en conséquence d'aider à déterminer les conditions les plus favorables à la production d'hélium polarisé dense.

Des outils indispensables ont dû être développés pour réaliser cette étude, afin de permettre la détermination expériementale de la polarisation et de suivre son évolution temporelle : il s'agit de mettre au point une méthode quantitative de mesure optique de la polarisation.

Afin de pouvoir analyser les processus intervenant dans le pompage optique, et en particulier afin de prendre en compte de manière quantitative et cohérente les diverses modifications de paramètres introduites par l'application d'un champ magnétique intense, il a été nécessaire de développer aussi les modèles théoriques et les outils numériques permettant de calculer les structures des niveaux, les spectres atomiques de la transition à 1083 nm de l'hélium, et l'effet détaillé des collisions d'échange de métastabilité en champ magnétique quelconque.

Ce sont ces deux derniers points qui font l'objet de la brève présentation donnée ici, les principaux résultats théoriques et expérimentaux étant exposés dans l'article détaillé reproduit en annexe à la fin du manuscrit. Des mesures indépendantes de densité de molécules d'hélium métastables sont exposées dans la suite. Elles apportent un important élément de réponse au point n°4 du programme général.

### 2.1.2 Structures fine et hyperfine de la transition $2^3$S-$2^3$P de l'hélium

Le diagramme d'énergie des atomes d'hélium en l'absence de champ magnétique est bien connu, et conduit aux niveaux et transitions optiques représentés sur la figure (1.1). L'atome d'hélium est un exemple typique de problème à trois corps qui ne peut pas être résolu complètement mais qui est abondamment étudié théoriquement et expérimentalement. Système modèle pour l'amélioration des techniques de calcul d'électrodynamique quantique, il est en passe de devenir un bon candidat pour une mesure indépendante de constantes fondamentales (voir la bibliographie de l'article en appendice). L'hamiltonien du problème s'écrit :

$$H = H_0 + W + H_F + H_{HF} + H_Z.$$

$H_0$ est ici l'hamiltonien principal, $W$ est un terme traité en perturbation qui corrige l'interaction entre électrons, $H_F$ est l'hamiltonien de structure fine, $H_{HF}$ l'hamiltonien de structure hyperfine qui tient compte de l'interaction des spins électroniques avec le spin nucléaire (pour l'hélium-3). $H_Z$ est l'hamiltonien Zeeman. Il rend compte de l'interaction des spins électroniques et nucléaires avec le champ magnétique. En champ magnétique non nul, la dégénérescence entre niveaux de même moment magnétique est levée. L'ordre de grandeur de cet effet nous est donné par l'effet Zeeman sur l'électron libre, qui est de 14 GHz par tesla. On voit donc que pour les valeurs du champ que l'on a étudiées (jusqu'à 1.5 tesla), les termes de structure fine, structure hyperfine et effet Zeeman sont du même ordre de grandeur. Divers degrés d'approximation sont exposés et discutés en appendice. Nous disposons d'une description de $H$ permettant de calculer numériquement (par diagonalisation dans chaque niveau $2^3$S ou $2^3$P de l'$^3$He ou de l'$^4$He) la structure des états propres (leur décomposition sur la base découplée $|L, S, I : m_L, m_S, m_I\rangle$) et les poids des diverses transitions atomiques entre sous-niveaux Zeeman pour la raie à 1083 nm. Il s'agit là d'une généralisation en champ magnétique quelconque des résultats de la référence [Nacher et al, 85], avec une précision améliorée pour l'hélium-3 (de l'ordre du MHz en énergie pour les écarts des niveaux, et meilleure que $10^{-4}$ pour les poids des raies).

Avec le double objectif de valider les calculs effectués, et de tester avec quelle précision de mesures élémentaires d'absorption sont susceptibles de renseigner sur les conditions régnant au sein d'un plasma d'hélium en champ intense, nous avons effectué une série de mesures dont les principales sont résumées ici.

### 2.1.3 Positions des transitions : mesures d'absorption saturée

A l'inverse des mesures de qualité métrologique que plusieurs groupes font sur des jets atomiques d'hélium, toutes nos mesures sont faites en cellule et à température ambiante dans des conditions permettant la polarisation des noyaux d'hélium-3 par pompage optique. La principale conséquence de cette situation est l'important effet Doppler qui élargit toutes les résonances de simple absorption dans le gaz. La distribution gaussienne des vitesses atomiques entraîne une largeur $\mathcal{D} = (\omega_{ij}/2\pi)\sqrt{2k_BT/M_{He}c^2}$ dépendant de la masse atomique $M_{He}$ de l'hélium. A température ordinaire ($T$ = 300 K), les largeurs Doppler pour l'hélium-3 et l'hélium-4 sont $\mathcal{D}_3$ = 1.19 GHz et $\mathcal{D}_4$ = 1.03 GHz à 1/e de la distribution. Les profils d'absorption pour des raies isolées (profils de Voigt) sont alors quasiment des gaussiennes de largeur $\mathcal{D}$ (avec des largeurs totales à mi-hauteur $D = 2\mathcal{D}\sqrt{\ln 2}$, respectivement 1.98 et 1.72 GHz). Une détermination précise des déplacements des fréquences de transition par effet Zeeman a donc été faite par une mesure d'absorption saturée classique qui permet d'éliminer l'effet Doppler. Le schéma du montage est donné sur la figure (2.1).

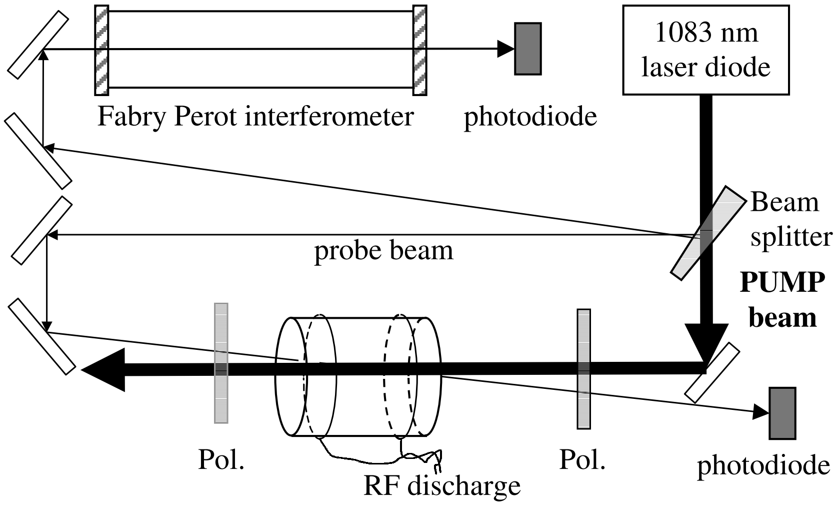


FIG. 2.1 – Principaux éléments d'une expérience d'absorption saturée. Un champ magnétique $B$ est appliqué soit longitudinalement aux faisceaux pompe et sonde, soit perpendiculairement. Suivant la polarisation souhaitée pour les faisceaux pompe et sonde, chaque élément polarisant (Pol.) consiste en un polariseur linéaire éventuellement suivi d'une lame quart d'onde.

Les expériences ont été faites le plus souvent sur des cellules contenant 1.06 mbar d'hélium-3 ou un mélange isotopique 0.53 mbar d'hélium-3 et 1.59 mbar d'hélium-4. Les cellules à mélange isotopiques permettent d'une part d'éviter le pompage électronique de l'hélium-4 (relaxation rapide par couplage avec l'hélium-3), et d'autre part de comparer directement les deux isotopes.

Le plasma est entretenu par une radiofréquence modulée en amplitude, et on détecte de manière synchrone avec cette modulation de la décharge la lumière recueillie après traversée de la cellule. La modulation d'intensité transmise enregistrée est donc proportionnelle à l'absorption (tant que celle-ci est faible) et à l'intensité de la sonde (susceptible de varier au cours d'un balayage en fréquence). Cette intensité moyenne est simultanément enregistrée. On peut donc ultérieurement calculer l'absorption à partir de ces deux signaux (voir annexe 1).

Le champ magnétique est appliqué le long de la direction de propagation des faiceaux laser, ou perpendiculairement à celle-ci pour les mesures en polarisation $\pi$. Le champ est engendré par un électro-aimant sans fer spécialement calculé et réalisé pour ces expériences. Il se compose de deux paires d'enroulements de même axe en fil de cuivre émaillé de 2 mm de diamètre. Les enroulements internes sont faits sur un manchon de diamètre 100 mm, comportent 16 couches et 492 tours, avec une section droite de 76x32 mm$^2$. Les enroulements externes sont faits autour des précédents (de diamètre externe de départ 164 mm), comportent 18 couches et 422 tours, avec une section droite de 42x36 mm$^2$. Les paires d'enroulement sont écartées de 28 mm, permettant un accès utile perpendiculairement à l'axe du champ. Des variations d'homogénéité du champ ont été déterminées en calculant numériquement la carte de champ de ces bobines. L'homogénéité est très bonne malgré la compacité du système : $<10^{-3}$ à $\pm 2.5$ cm du plan médian dans un cylindre de 1 cm de diamètre (volume typique exploré par les faisceaux lumineux dans nos cellules), et $<3\times 10^{-3}$ à $\pm 2.5$ cm du plan médian dans un cylindre de 5 cm de diamètre (volume total des cellules, intervenant pour la relaxation nucléaire lors d'expériences de pompage optique). Ces valeurs ont été confirmées par des mesures de relaxation de $M$ dans le plasma très sensibles aux inhomogénéités du champ (voir 1.3.1).

Le champ engendré par un courant électrique circulant dans les enroulements connectés en série a été calibré indépendamment par RMN de l'hélium-3, et vaut 9.26 mT/A. Un champ de 0.1 tesla est donc obtenu pour 10.8 A, avec une puissance dissipée de 700 W. Un refroidissement sommaire de l'extérieur des enroulements permet d'appliquer 13 A et ainsi d'atteindre 0.12 T. Une série d'expériences complémentaires a été menée à l'Institut de Physique de l'Université de Cracovie en collaboration avec T. Dohnalik et K. Kiersnowski dans l'entre-fer d'un électroaimant permettant d'atteindre 0.2 T, mais avec de moins bonnes conditions de stabilité optique des faisceaux qu'avec le dispositif que nous avons réalisé, et qui est assez compact pour prendre place sur une table optique.

Le faisceau laser est collimaté (collimateur $f = 8$ mm) pour constituer un faisceau pompe parallèle. Le faisceau sonde qui en est prélevé est diaphragmé et atténué. Un contrôle indépendant des polarisations (linéaires ou circulaires) des deux faiceaux est effectué au moyen de lames retardatrices et de cubes polariseurs.

La source laser est une diode monomode DBR (non asservie sur une cavité ou un réseau externe) dont la largeur en fonctionnement libre est de l'ordre de 3 MHz. Compte tenu de la dépendance de la fréquence d'émission avec le courant d'alimentation de la diode (500 MHz/mA) et avec la température (20 GHz/°C), ainsi que de la stabilité de l'alimentation et de la régulation thermique de la diode (quelques $\mu$A et un millidegré), on s'attend à un "jitter" de l'ordre de quelques dizaines de MHz. Ceci est comparable à la largeur de la transition atomique qui a un temps de vie radiatif de 0.6 $\mu$s et qui subit un élargissement collisionnel de 20 MHz/torr [Bloch et al, 85]. La fréquence du laser est contrôlée par un asservissement de la température de la diode ; le thermomètre d'asservissement forme l'une des branches d'un pont de Wheatstone, et un balayage de fréquence est obtenu en faisant varier une tension de consigne pour l'élément Peltier. Ces deux éléments sont fixés sur le support même de la diode par le constructeur. La linéarité et la reproductibilité des balayages a été mesurée au moyen d'un étalon Fabry-Pérot (50 cm, ISL 150 MHz). Un enregistrement typique est donné sur la figure (2.2).

Nous donnons d'abord des résultats obtenus sur les raies issues de $C_8$ et $C_9$ (figures 2.3 et 2.4), qui sont les plus favorables tant pour le pompage optique que pour la détection de l'orientation nucléaire (voir plus bas).

La partie du spectre contenant les raies $C_1$ à $C_7$ est bien plus complexe, et les structures sont souvent inférieures à la largeur Doppler. Ces transitions sont malgré tout importantes d'un point de vue spectroscopique, car elles seules testent la structure fine et hyperfine du niveau $2^3$P. Nous montrons une série d'enregistrements en fonction du champ sur la figure (2.5).

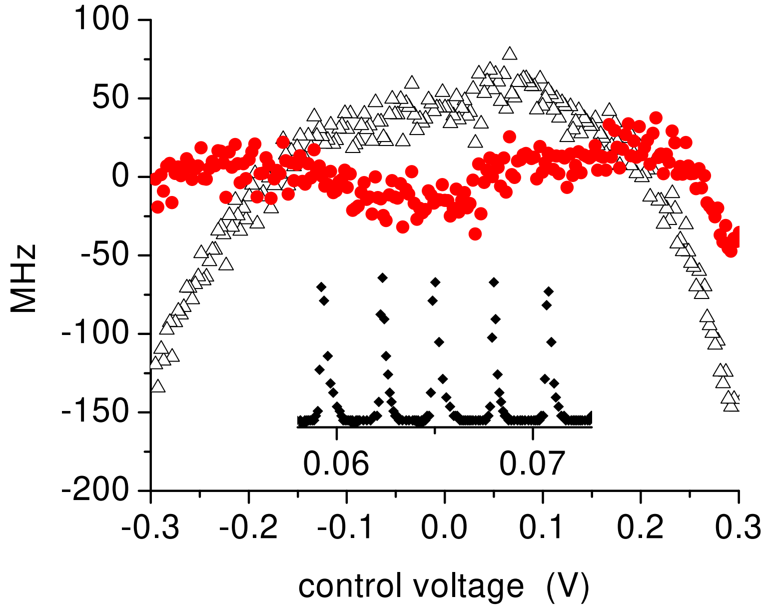


FIG. 2.2 – Insert : portion d'enregistrement de la transmission d'un étalon Fabry-Pérot lors d'un balayage de la diode laser utilisé pour contrôler la régularité de la variation en fréquence émise en fonction du voltage appliqué (échantillonnage à 20 ms/point, pics tous les 150 MHz). Graphe principal : résidus d'un ajustement linéaire ou parabolique du rapport entre fréquence/tension de commande.

Lorsqu'on soustrait les spectres précédents à ceux enregistrés en l'absence de faisceau pompe (absorption normale), les structures larges se compensent presque exactement, et les pics fins d'absorption saturée sont mis en évidence et peuvent être repérés avec une grande précision (figure 2.6).

Les écarts de fréquence à la raie $C_1$ (en GHz) des raies significatives sont déduits avec une précision de quelques MHz sur chaque enregistrement. Les raies non repérées par un symbole sur la figure (2.6) correspondent à des intercombinaisons (coïncidence des transitions de/vers un sous-niveau commun à l'excitation par la sonde et la pompe). L'analyse d'un grand nombre de tels enregistrements a été taite pour diverses intensités du champ (jusqu'à 0.2 T). Nous montrons sur la figure 2.7 l'écart de nos mesures en champ nul avec le résultat de nos calculs.

L'accord à quelques MHz près qui est obtenu est tout à fait satisfaisant compte tenu des techniques assez sommaires que nous avons employées (diode laser en fonctionnement libre, mesures en cellule à température ambiante et pression assez importante). En outre l'amélioration obtenue par moyennage des mesures indique que les mesures ne sont probablement pas entachées d'un biais systématique supérieur à quelques MHz, même lorsqu'on enregistre des spectres sur l'ensemble de la structure fine, hyperfine et Zeeman de l'hélium (de l'ordre de 100 GHz en tout).

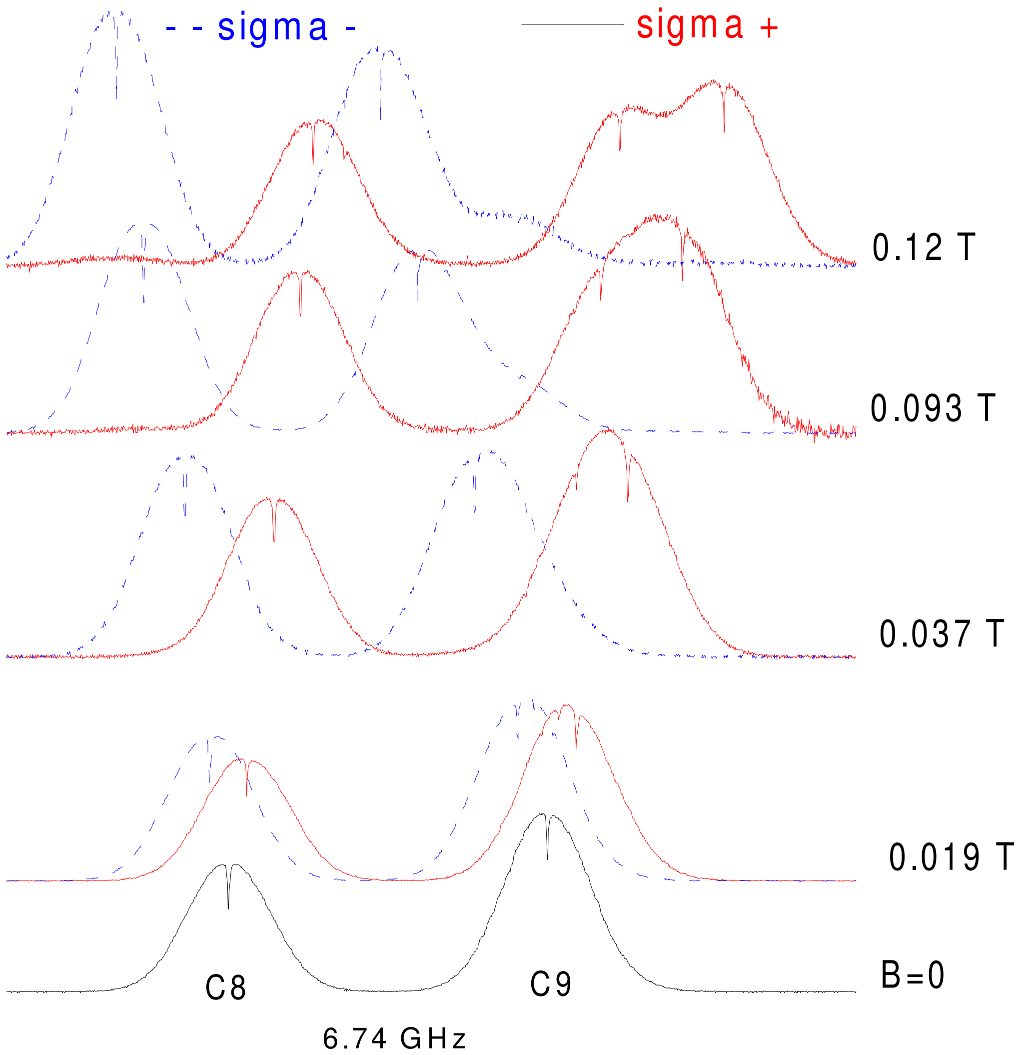


FIG. 2.3 – Spectres d'absorption saturée des raies $C_8$-$C_9$ de $^3$He pour divers champs magnétiques en polarisations circulaires de pompe et sonde.

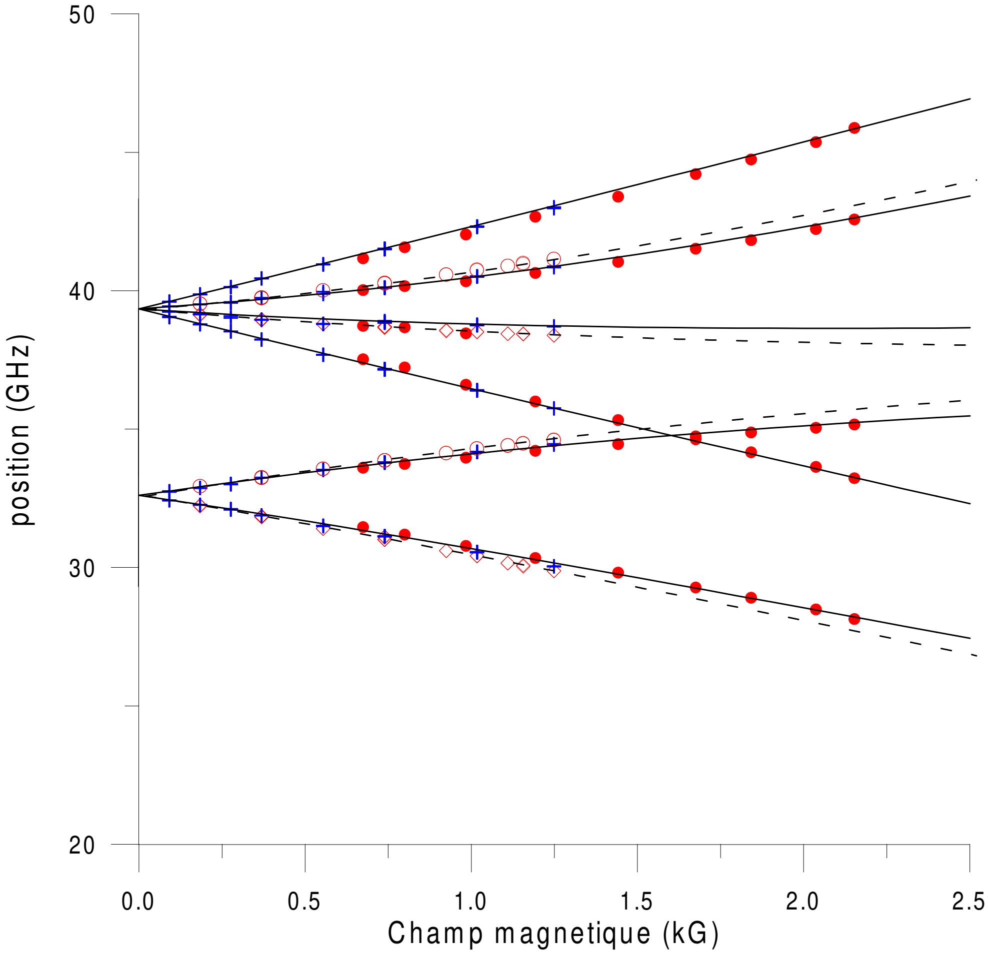


Fig. 2.4 – Position des niveaux correspondant aux transitions $C_8$ et $C_9$ de l'hélium-3 pour divers champs magnétiques (symboles). Les courbes continues correspondent aux positions calculées. Toutes les polarisations sont représentées (la polarisation $\pi$ correspond aux courbes en pointillés et aux symboles ouverts). Pour cette région du spectre, tous les pics ont été identifiés et l'accord est excellent (écarts de l'ordre de 10 à 30 MHz). Les intensités des différentes transitions (non représentées) ont également été mesurées avec précision, et l'ensemble de ces mesures sert de base à la méthode de détection optique en champ intense qui sera décrite plus loin.

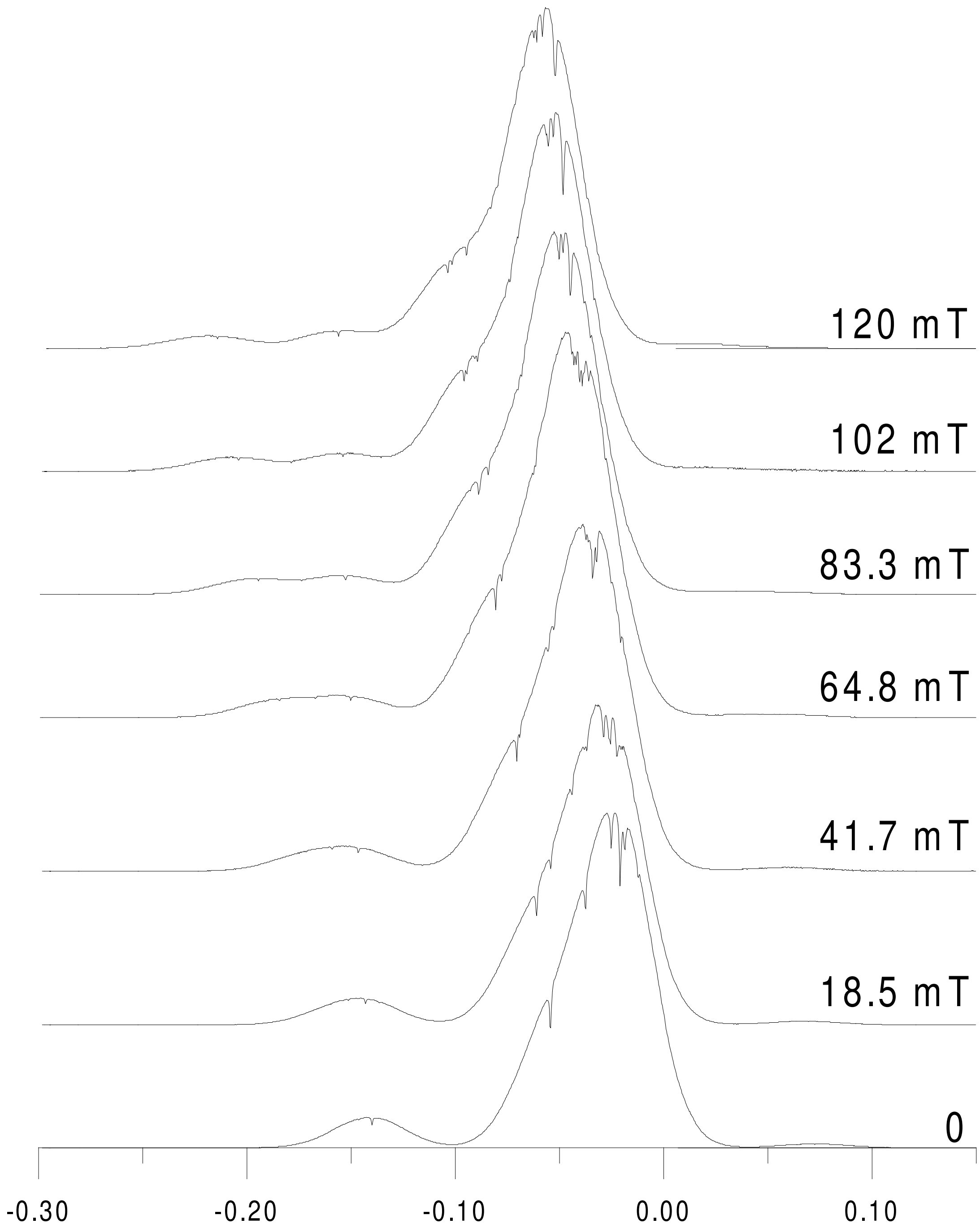


FIG. 2.5 – Spectres d'absorption saturée des raies $C_1$-$C_7$ de $^3He$ pour divers champs magnétiques en polarisations $\sigma_+$ de pompe et sonde.

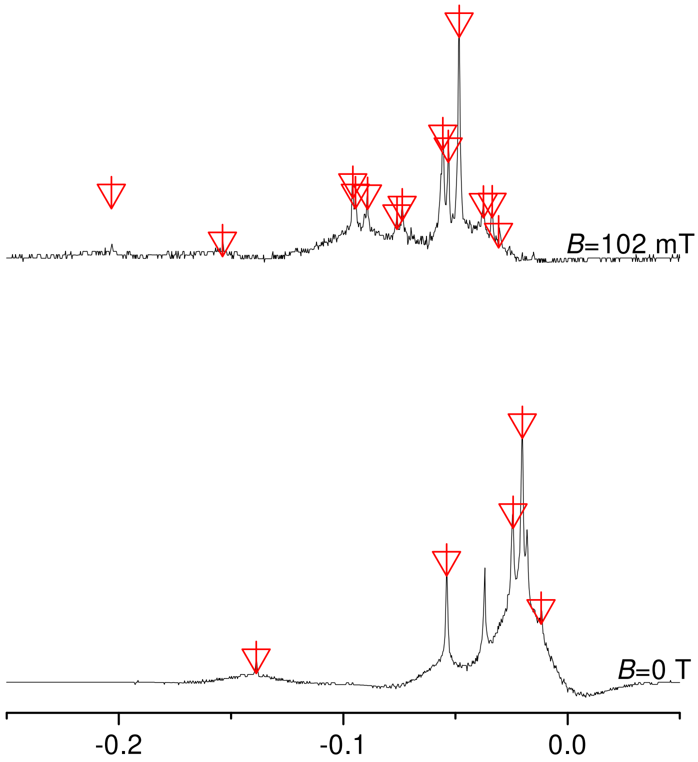


FIG. 2.6 – Spectres d'absorption saturée des raies $C_1$-$C_7$ de $^3$He pour divers champs magnétiques en polarisations $\sigma_+$ de pompe et sonde, corrigés des variations globales dues à l'absorption normale de la sonde.

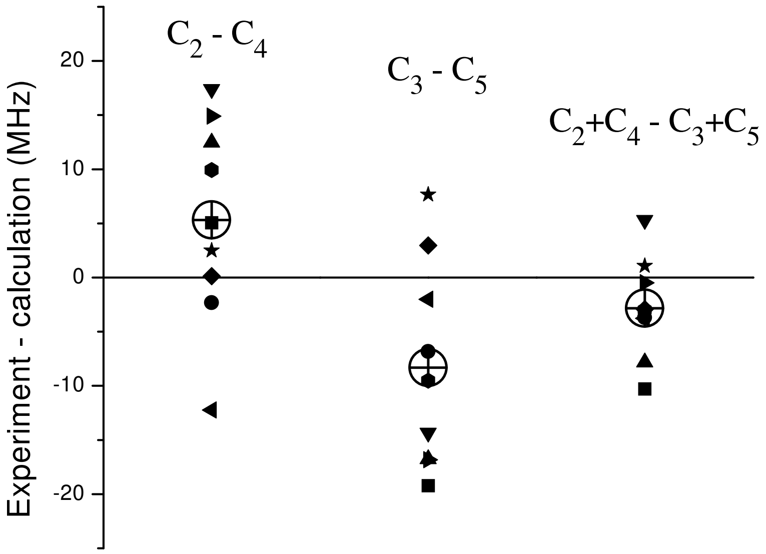


FIG. 2.7 – Différences entre des écarts de fréquence de raies mesurés et calculés en champ nul. Les grands symboles ouverts sont les moyennes statistiques des mesures effectuées.

### 2.1.4 Intensité des transitions

Ayant vérifié que des mesures d'absorption effectuées en balayant en température une simple diode laser permettent de repérer sans ambiguité toutes les composantes de la transition $2^3$S-$2^3$P, mais aussi de quantifier le champ magnétique en se fondant sur le résultat des structures Zeeman calculées, nous avons entrepris de systématiquement mesurer la façon dont les diverses raies atomiques deviennent plus ou moins intenses lorsque le champ appliqué augmente. Ce point est crucial dans la perspective de mesures optiques de polarisation, comme on le verra plus bas, et de la détermination des conditions de pompage optique les plus efficaces.

#### Montage expérimental

L'intensité des signaux d'absorption saturée étant une fonction non-linéaire de forces d'oscillateur, nous avons effectué des mesures d'absorption standard en l'absence de tout faisceau pompe, avec un dispositif comparable à celui de la figure (2.1) afin de déterminer ces dernières très précisément en fonction de $B_0$. Outre les mesures effectuées jusquà 0.12 T au LKB, et jusqu'à 0.2 T à Cracovie, nous avons effectué une campagne d'expériences au CHU du Kremlin-Bicêtre ; le champ magnétique utilisé est celui d'un imageur RMN. Outre l'intérêt d'avoir un champ magnétique permanent de 1.5 T, ceci a permis de tester la maniabilité du dispositif expérimental en milieu hospitalier, et a été utile pour la conception d'une unité portable de préparation de gaz hyperpolarisé qui est maintenant opérationnelle dans cet hôpital et permet en routine de recherche d'y faire des images. Une carte sommaire du champ magnétique, le long de l'axe de l'aimant, dans la pièce où se trouve l'imageur, a été établie grâce à une sonde à effet Hall. Quatre positions ont été retenues pour la cellule : $6 \times 10^{-3}$ T (champ considéré comme un champ nul car l'effet Zeeman est encore très faible), 0.4 T, 1 T, et 1.5 T. Les valeurs 1.5 T et 1 T n'ont pas pu être mesurées directement (le teslamètre contenait en effet des éléments magnétiques et il aurait pu être irrémédiablement "avalé" par l'aimant de l'imageur). Cependant la valeur de 1.5 T est garantie par le constructeur de l'imageur. De plus, elle est vérifiée régulièrement lors d'expériences de résonance magnétique sur le proton, dont la fréquence de résonance en fonction du champ est très bien connue. La valeur de 1 T pour le champ a été obtenue en plaçant la cellule à l'extrême bord de l'imageur. Cette valeur approchée est donnée par les cartes du champ de fuite fournies par l'installateur de l'aimant. On a pu la confirmer en confrontant le spectre obtenu et le spectre calculé.

Pour toutes ces mesures, nous avons atténué assez fortement le faisceau sonde (typiquement 0.1-1 mW/cm$^2$). Une mesure complète d'un spectre dans un champ intense consiste donc à réaliser des balayages partiels de fréquence sur des "gammes" de 20-30 GHz où la fréquence varie de façon presque linéaire avec la consigne, avec seulement une faible correction au second ordre (figure 2.2). Les recouvrements des gammes doivent être suffisants pour que deux gammes voisines aient au moins une raie en commun. Avec cette procédure, l'erreur sur les échelles de fréquence est rendue négligeable et les raies sont repérées sans ambiguité.

Un exemple de spectres enregistrés à fort champ pour un mélange (0.53 mbar d'hélium-3 et 1.59 mbar d'hélium-4) est donné sur la figure (2.8).

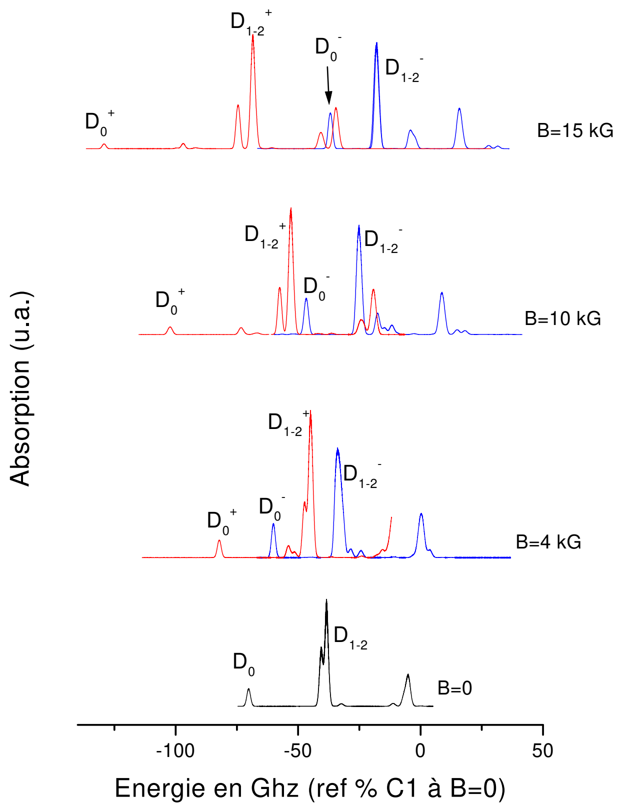


FIG. 2.8 – Spectres d'absorption obtenus pour quatre valeurs de champ différentes en polarisations circulaires dans un mélange isotopique (0.53 mbar d'hélium-3 et 1.59 mbar d'hélium-4). Les indices (+) ou (-) sur les composantes correspondent respectivement à des polarisations $\sigma_+$ et $\sigma_-$ du faisceau sonde.

La difficulté d'analyse de ces spectres entachés d'élargissement Doppler (cf les enveloppes larges des spectres d'absorption saturée ou les spectres de mélanges isotopiques) vient des superpositions de raies différentes comportant un grand nombre de composantes. Un ajustement de plusieurs gaussiennes ne permet d'obtenir un résultat précis et fiable que dans les cas de raies isolées ($D_0$ pour $^4$He, $C_8$ et $C_9$ hors de croisements pour $^3$He).

Une étude détaillée des largeurs et des formes de ces spectres nous ont révélés trois effets systématiques différents. Ils sont plus détaillés dans l'article donné en annexe et nous donnons ici les principaux résultats.

**Effets systématiques**

1. En présence d'$^4$He , même sous formes de traces, l'analyse quantitative des intensités des raies de l'$^3$He est délicate à cause de la quasi-coincidence $D_2$-$C_9$. C'est ainsi par exemple qu'en champ nul, les largeurs mesurées dans nos conditions expérimentales, sont systématiquement plus grandes de 1.5 à 2% pour la raie $C_9$ que pour la raie $C_8$. Cette faible quantité d'$^4$He dans nos cellules vient de la procédure de dégazage des cellules avec de nombreuses dans le gaz d'$^4$He avant remplissage par l'$^3$He. L'intensité mesurée de la raie isolée $D_0$ de l'$^4$He dans un spectre en champ nul permet d'évaluer la proportion d'$^4$He, de l'ordre de 0.2% ; on peut alors retrancher la contribution d'$^4$He pour l'interprétation des spectres. En présence d'un champ magnétique, il faut aussi faire attention aux défauts de polarisation circulaire imparfaite du faisceau sonde induits par dichroïsme circulaire des faces de la cellule et corriger de même la contribution ramenée par l'$^4$He.
2. Comme nous l'avons mentionné précédemment, les mesures d'absorption pour des champs supérieurs à 0.25 T ont été effectuées dans le champ de frange d'un aimant de 1.5 T. Dans l'axe longitudinal au champ, les gradients de champ peuvent valoir jusqu'à 15 mT/cm pour certaines positions (alors que dans les variations du champ dans l'axe transversal sont beaucoup plus petites au voisinage de l'axe du champ). La distribution du champ dans le plasma entraîne une distribution des fréquences $\epsilon_{ij}/h$ des transitions optiques d'un niveau $i$ vers $j$. Pour obtenir les profils d'absorptions, il faut donc déconvoluer la distribution Doppler des vitesses et la fonction d'étalement des fréquences calculée à partir de la distribution de densité des atomes métastables, du gradient de champ et de la dérivée $d\epsilon_{ij}/dB$.
3. Pompage optique

### 2.1.5 Mesures de polarisation nucléaire en champ intense

A cause des effets de découplage hyperfin introduits par le champ, il est connu que la méthode classique de détection optique de la polarisation nucléaire (dichroisme circulaire proportionnel à $M$ de la lumière émise par la cascade radiative dans le plasma [Pinard et al, 74]) perd son efficacité au-dessus de 10 mT. C'est pour cette raison qu'il a été indispensable de directement mesurer les populations de sous-niveaux Zeeman dans l'état $2^3$S. Il s'agit d'une extension naturelle de la méthode de la référence [Bigelow et al, 92], dans laquelle un faisceau transverse au champ et de polarisation linéaire (à 45°) sonde l'absorption en polarisations $\pi$ et $\sigma$ sur la même partie de la cellule, simultanément, mais de manière aisément séparable. Ces deux mesures donnent une information suffisante pour remonter à la densité totale et à la polarisation nucléaire dans l'état métastable.

On peut montrer que le principe sous-jacent à la méthode s'étend en champ quelconque (voir l'article en appendice). D'une part, les collisions d'échange de métastabilité maintiennent toujours un important couplage entre la polarisation nucléaire $M$ et la répartition des populations des sous-niveaux Zeeman, même si la décomposition de ces niveaux sur une base découplée est profondément affectée. D'autre part, il existe un grand nombre de possibilités de faire des mesures d'absorption conduisant à la détermination de combinaisons indépendantes de populations, d'où l'on pourra en principe extraire $M$ et la population totale. Cette correspondance suppose seulement qu'on connaisse la structure des niveaux sondés et les probabilités des transitions optiques utilisées, ce qui a motivé toute l'étude et les mesures évoquées ci-dessus.

La technique employée en champ nul pour sonder des sous-niveaux Zeeman différents repose sur une sélection des transitions excitées par la polarisation du faisceau sonde, les énergies de niveaux étant dégénérées. La situation est ici fort différente, et cette méthode ne serait opérationnelle que pour des situations accidentelles de croisements de niveaux. Nous avons donc exploré diverses situations où l'on sonde des populations différentes par des mesures d'absorption effectuées à des fréquences différentes. A 0.1 T, la plus sensible des configurations de mesure consiste à successivement mesurer l'absorption d'un faisceau sonde transverse en polarisation $\pi$ sur les deux transitions centrales du quadruplet issu de $C_8$-$C_9$ (figure 2.4). Il s'agit de deux raies bien isolées, d'intensités comparables. On a sur la figure (2.9) un exemple d'enregistrement d'un balayage C8 vers C9 du laser

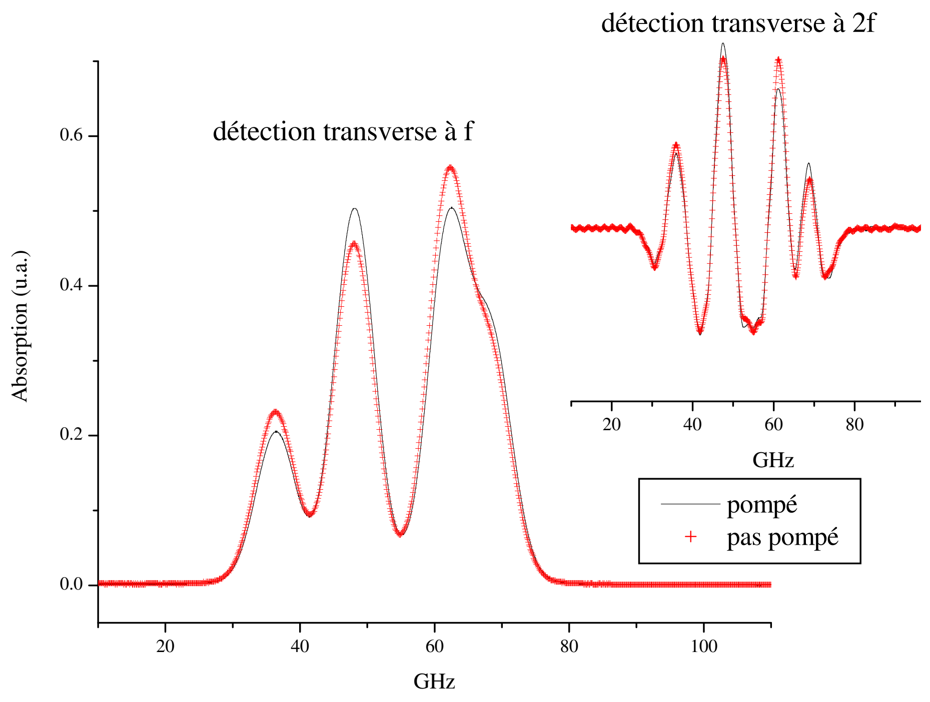


FIG. 2.9 – **En bas :** absorption d'un faisceau sonde transverse en polarisation $\pi$ sur les transitions centrales du quadruplet issu de $C_8$-$C_9$ (balayage $C_8$ vers $C_9$). Le laser de pompe est ici une diode laser délivrant une puissance incidente de l'ordre de 30 mW sur 0.5 cm$^2$ (pompage C9, polarisation $\sigma_-$). Les croix correspondent à la $M = 0$ (pas de pompe) et la courbe en trait plein à la situation pompée, on trouve ici $M$ ~0.11. Enregistrement avec une constante de temps de 500 ms. **En haut :** enregistrement à 2f.

sonde (diode laser atténuée) pour une cellule avec une pression de 6.45 torr. Le champ est ici de B=0.0926 T avec un laser de pompe (C9, polarisation $\sigma_-$) qui est ici une autre diode laser délivrant une puissance de l'ordre de 30 mW sur 0.5 cm$^2$. On ne s'intéresse ici qu'au régime stationnaire du pompage optique. Pour ces mesures d'absorption, on module ici la décharge radiofréquence (modulation à des fréquences faibles de typiquement f$\sim$100 Hz) et on démodule ensuite le signal du faisceau sonde à l'aide d'un amplificateur à détection synchrone. On a un premier enregistrement avec la pompe coupée ($M = 0$) puis on met la pompe et on attend 4-5 minutes (on a atteind le régime stationnaire de pompage) et on reprend un deuxième enregistrement. De la variation d'amplitude des populations, on est capable de déduire la polarisation $M$, ici $M \sim$0.11.

On peut aussi réaliser non plus une modulation à f en ne modulant que la décharge, mais à 2f en modulant aussi le laser sonde (en lui modulant son courant par exemple). En haut de la figure (2.9), on a pour les mêmes conditions expérimentales une telle détection transverse à 2f. On trouvera dans l'article donné en annexe, une discussion entre ces deux modulations à f et 2f .

Dans le cas du pompage optique dans l'$^4$He, on peut utiliser le principe de cette détection transverse en $D_0$ en comparant les populations avec des polarisations $\sigma_-\sigma_+$ et $\pi$ avec un cube placé (à 45°). Sur la figure (2.10), on donne un exemple d'un tel enregistrement.

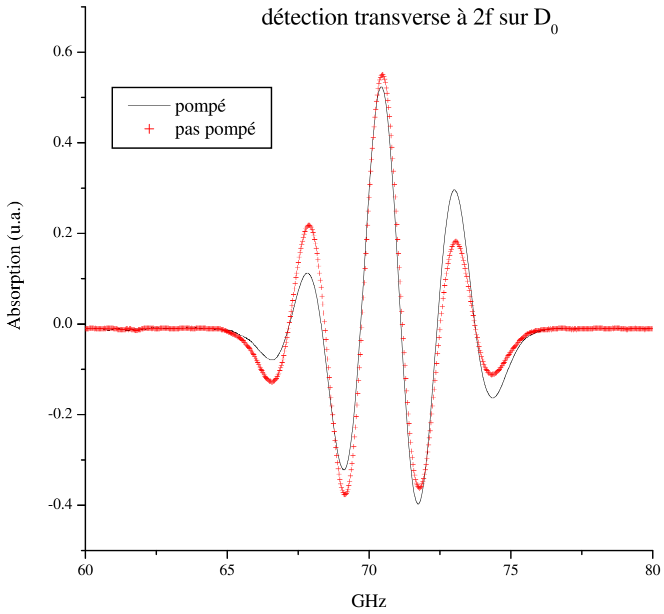


FIG. 2.10 – Absorption d'un faisceau sonde transverse en polarisation $\sigma\pm$, $\pi$ sur $D_0$. Le pompage s'effectue ici sur la transition $D_0$ en polarisation $\sigma_-$ dans un mélange isotopique de 1.4 torr $^3$He/5 torr $^4$He. La pompe est une diode laser délivrant une puissance incidente de l'ordre de 30 mW sur 0.5 cm$^2$. Les croix correspondent à la $M = 0$ (pas de pompe) et la courbe en trait plein à la situation pompée, on trouve ici $M \sim$0.27. Enregistrement avec une constante de temps de 500 ms.

Pour s'intéresser non plus au régime stationnaire mais à la cinétique du pompage optique avec la construction de $M$ dans les conditions de PO et sa relaxation dans le plasma, on peut répéter les expériences précédentes en enregistrant maintenant successivement deux absorptions. Sur la figure (2.11) on a un exemple d'une telle mesure avec l'enregitrement des absorptions des deux raies les plus intenses de la figure (2.9). Ici, on ne module que la décharge radiofréquence.

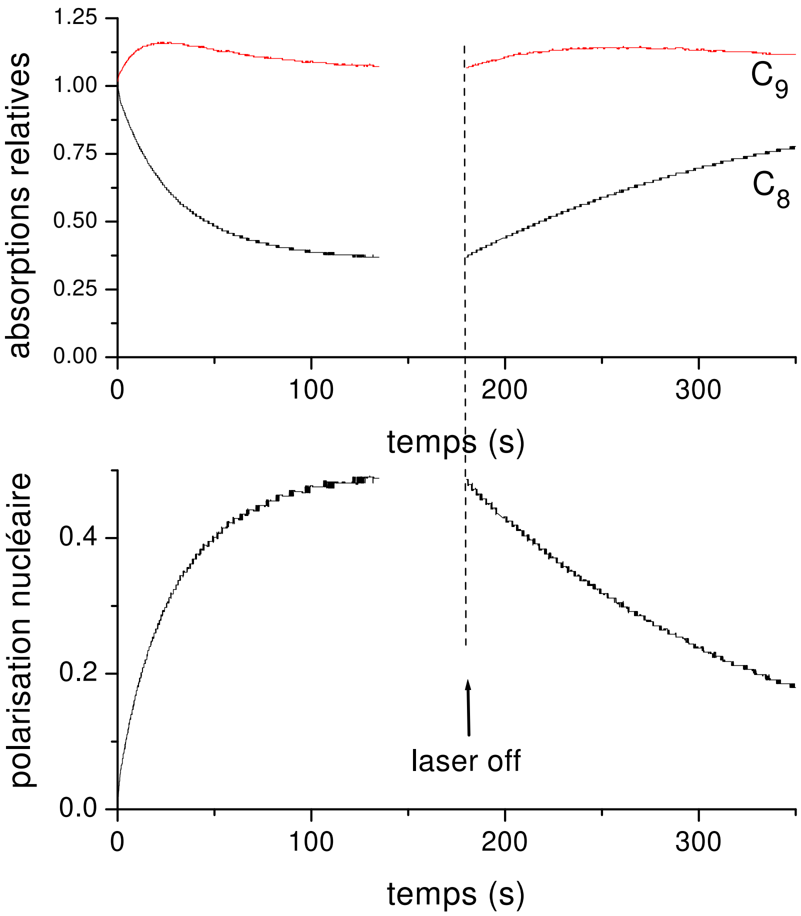


FIG. 2.11 – **Haut** : Signaux d'absorption sondant deux populations de deux sous-niveaux Zeeman ($A_3$ par $C_9$, $A_5$ par $C_8$) au cours d'une phase de pompage optique (cellule de 1.07 mbar d'hélium-3, laser de pompe sur C9, sigma + avec une puissance incidente de 150 mW) puis de relaxation nucléaire. A t=0 s, on à $M$=0. **Bas** : Evolution de la polarisation nucléaire, calculée à partir des mesures d'absorption.

### 2.1.6 Conclusion

Cette méthode de mesure par absorption, qui donne accès à la cinétique du pompage optique dans un plasma d'hélium, peut être utilisée quel que soit le champ magnétique appliqué. Elle s'applique aussi à toute pression contrairement à la méthode traditionnelle qui, même en faible champ, devient inopérante lorsque la pression est trop importante [Leduc et al, 83]. Elle s'est révélée précieuse pour interpréter les expériences de pompage optique dans ces conditions non-standard, ainsi qu'il apparaitra dans la suite. Mentionnons ici pour finir qu'elle sera prochainement utilisée jusqu'à 1.5 T pour permettre l'exploration, en fonction du champ magnétique, de la compétition des divers processus qui conditionnent l'efficacité du pompage optique.

## 2.2 Spectroscopie moléculaire

### 2.2.1 Résultats expérimentaux de cinétique de pompage optique pour les fortes pressions

Comme nous l'avons vu, traditionnellement la technique de pompage optique par échange de métastabilité permet d'obtenir, en champ magnétique faible (B $< 10^{-2}$ tesla) et à de faibles pressions ($\sim$ mbar), des polarisations nucléaires $M$ importantes ($M \sim 80\%$, [Bigelow et al, 92]) du niveau fondamental $^1\mathrm{S}_0$ de l'hélium-3. Ces faibles pressions ne sont pas favorables aux applications médicales d'imagerie par résonance magnétique qui nécessitent la production d'hélium-3 gazeux très polarisé et dense (pour pouvoir être inhalé, le gaz doit être à pression atmosphérique).

Nous avons observé que le pompage optique était encore efficace à de fortes pressions sous réserve de se placer en fort champ magnétique (à $\sim$ 100 mbar, $M \sim 5$ % pour B $\sim$ 0.1 tesla). Afin d'étudier les processus intervenant dans ces conditions, nous avons entrepris des études systématiques de cinétique de pompage optique à 0.1 tesla pour diverses pressions.

#### Cellule à 40.4 mbar

Cette cellule scellée, remplie d'hélium-3 pur, est composée de deux parties (figure 2.12). Tout d'abord la partie cylindrique est un tube de 10 cm de long et de 0.8 cm de diamètre. Il est particulièrement bien adapté à faire un plasma à cette pression. En effet, plus la pression est forte et plus la partie lumineuse de la décharge a tendance à se localiser près des électrodes excitatrices. Le faible diamètre du tube permet aussi de conserver une forte densité de puissance laser pour un recouvrement optimal du faisceau et le plasma. Ensuite la seconde partie, qui lui est reliée, est sphérique et possède un volume important. Elle permet d'avoir une aimantation totale suffisante pour faire des mesures par Résonance Magnétique Nucléaire (RMN). La diffusion du gaz est en effet assez rapide entre les deux parties pour assurer l'uniformité de $M$ entre le tube où elle est préparée par pompage optique et la sphère où elle est détectée.

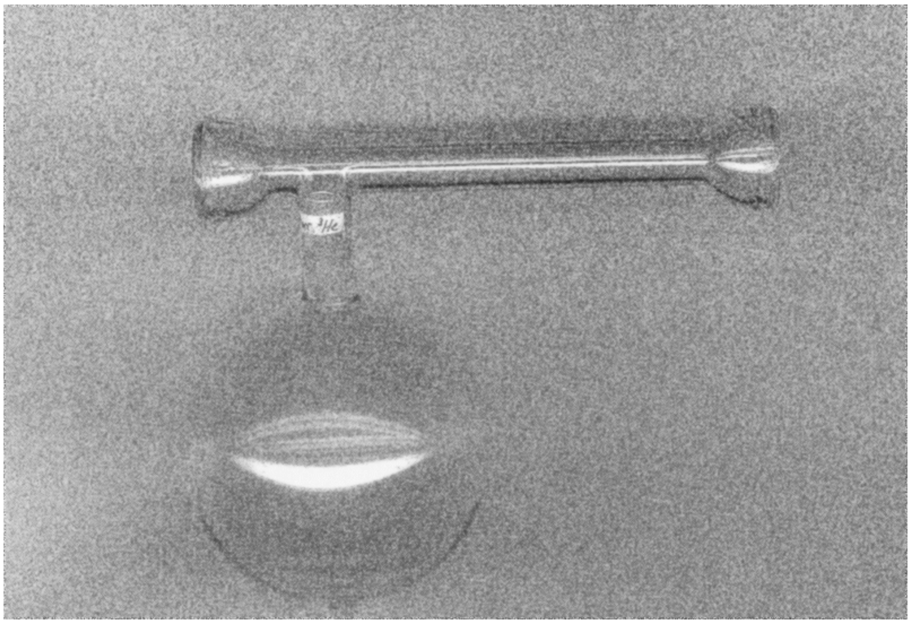

FIG. 2.12 – Schéma de la cellule à 40.4 mbar ; elle est composée d'une partie cylindrique (tube de 10 cm de long et de 0.8 cm de diamètre) particulièrement bien adaptée pour entretenir un plasma uniforme à cette pression, et d'une partie sphérique pour faire des mesures par RMN de la polarisation nucléaire $M$ obtenue par pompage optique dans la partie cylindrique.

**Montage expérimental**

Le schéma de l'expérience est représenté sur la figure (2.13).

La cellule de 40.4 mbar d'hélium-3 est placée dans le champ magnétique d'un appareil IRM (à l'U2R2M sur le campus d'Orsay) permettant d'avoir un champ de 0.1 T très homogène. Le laser de pompage (0.6 W) est ici une diode laser amplifiée sans focalisation du faisceau laser, des intensités jusqu'à 15 Watts/cm$^2$ pour un diamètre de 0.22 cm. La mesure optique de la polarisation nucléaire $M$ reposant sur des absorptions comparées d'un faisceau laser sonde des populations par différents sous-niveaux Zeeman nous a permis d'accéder à la cinétique de pompage optique et d'en déduire des paramètres comme la polarisation nucléaire d'équilibre $M_{eq}$, le temps de construction $\tau_{build}$ de $M$ vers $M_{eq}$ et de relaxation $(T_{relax})_{déch}$ de $M$ dans le plasma en l'absence de lumière de pompage. Pour des raisons de contraintes géométriques, nous avons préféré détecter l'absorption transverse au tube (avec une lame $\lambda/2$ et un cube polariseur) en polarisation $\pi$. Nous avons enregistré séquentiellement les transitions ($2^3$S$_1$, F=1/2, m$_F$=1/2→ $2^3$P$_0$, m$_F$=1/2) et ($2^3$S$_1$, F=3/2, m$_F$=−1/2→ $2^3$P$_0$, m$_F$=−1/2). Ces deux transitions sont bien résolues à 0.1 T et ne sont séparées que de 2.5 GHz, ce qui permet une comparaison facile des absorptions. De plus ces deux transitions sont intenses, ce qui permet une détermination plus précise de $M$ (de l'ordre de 0.3% avec une constante de temps de 1 s pour l'enregistrement).

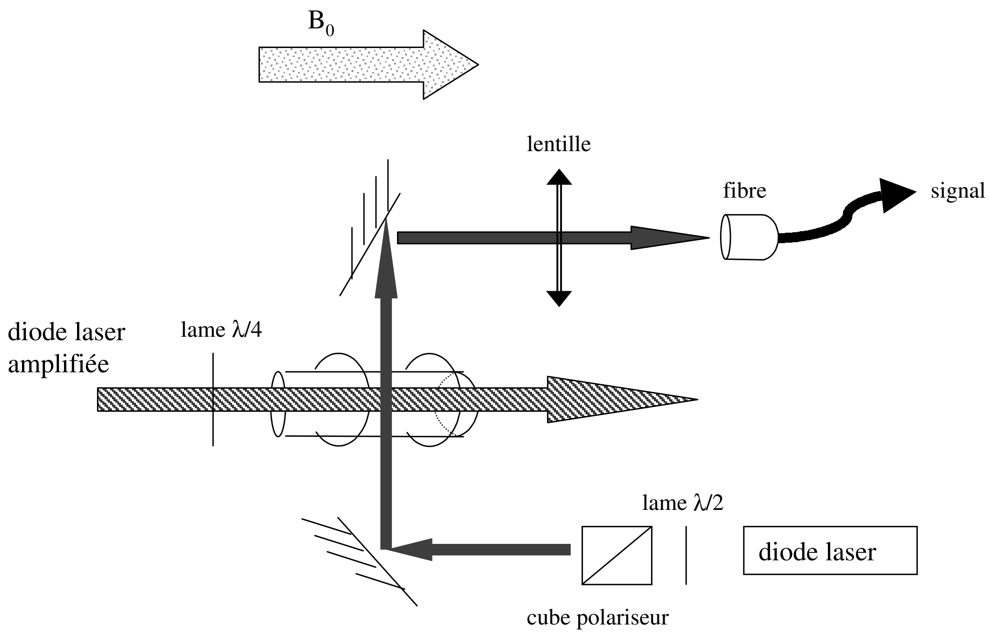


FIG. 2.13 – Schéma du montage du pompage optique de la cellule à 40.4 mbar à 0.1 T dans le champ magnétique homogène d'un IRM. La partie sphérique de cette cellule n'est pas représentée. Pour mesurer $M$, on enregistre séquentiellement la variation d'absorption de deux transitions $\pi$ ($2^3S_1$, F=1/2, $m_F$=1/2$\rightarrow$ $2^3P_0$, $m_F$=1/2) et ($2^3S_1$, F=3/2, $m_F$=$-1/2$$\rightarrow$ $2^3P_0$, $m_F$=$-1/2$). Le signal est collecté par une fibre longue de plusieurs mètres avant d'être analysé, pour ne pas introduire d'appareils électroniques dans la cage de Faraday.

### Polarisation d'équilibre

Le tableau (2.1) présente les polarisations d'équilibre obtenues à 0.1 T dans

| | 1 mbar | 8.5 mbar | 40.4 mbar |
|---|---|---|---|
| 80 mW | 29 % | 15 % | 8 % |
| 260 mW | 38 % | | |
| 800 mW | 49 % | 20 % | 8.6 % |

TAB. 2.1 – Résultats de polarisation d'équilibre atteinte à 0.1 T pour diverses pressions et intensités laser. Les deux plus fortes puissances sont obtenues avec la diode laser amplifiée. Toutes tiennent compte du double passage que le faisceau laser effectue dans la cellule grâce au miroir de renvoi.

la cellule à 40.4 mbar décrite ci-dessus et dans des cellules cylindriques (5 cm de diamètre et 5 cm de longueur) de plus basse presssion.

On peut faire deux observations sur ces résultats :

- à 40.4 mbar et avec une diode laser non amplifiée, on obtient à 0.1 T $M_{eq} \sim 8$ % contre $M_{eq} \sim 3.6$ % à très faible champ. Une telle variation avec le champ magnétique n'existe pas pour une pression de 1 mbar.

– $M_{eq}$ à 0.1 T ne varie pas signicativement dans la cellule à 40.4 mbar pour une intensité de lumière de pompage optique comprise entre 0.16 et 15 Watt/cm$^2$. Ceci est clairement très différent pour des résultats obtenus à 1 mbar dans le même champ.

**Temps de pompage et relaxation : régime linéaire**

Sur la figure (2.14), on peut voir la construction de $M$ dans le tube de

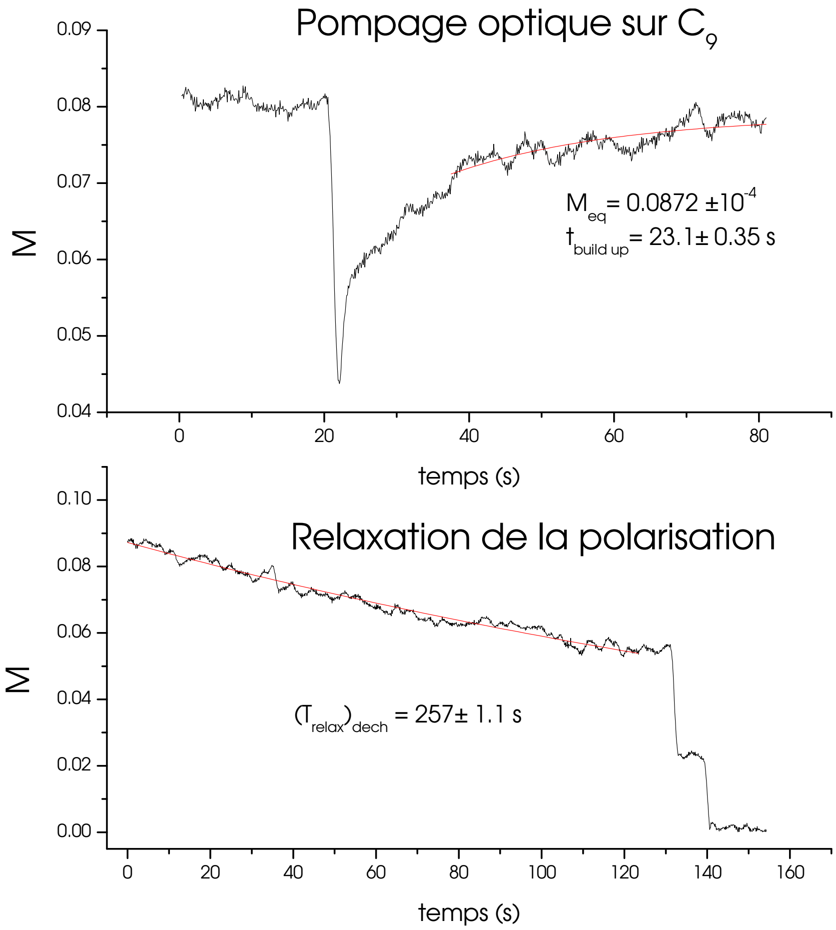


FIG. 2.14 – Cinétique de pompage dans le tube de la cellule de 40.4 mbar avec une diode amplifiée sur la transition $C_9$ et une intensité de 15 Watts/cm$^2$. On trouve un temps de construction de la polarisation $\tau_{build} = 23.1$ s et un temps de relaxation dans le plasma $(T_{relax})_{déch} \sim 257$ s. La polarisation a été volontairement détruite à t= 130 s pour repérer le zéro.

40.4 mbar pour un pompage optique sur la transition $C_9$ et une intensité laser de 15 Watts/cm$^2$. Comme précédemment, pour avoir une grande dynamique de la construction de $M$ en présence du laser de pompage, une impulsion RMN de 180° permet de renverser $M$ lorsqu'elle a quasiment atteint $M_{eq}$ (on a alors une variation de $M$ de $-M_{eq}$ à $M_{eq}$). On désaccorde ensuite le laser pour enregistrer la relaxation de $M$ dans le plasma en l'absence de pompage optique. On peut alors extraire trois paramètres expérimentaux que sont $M_{eq}$, $\tau_{build}$ et $(T_{relax})_{déch}$ définis précédemment.

Dans toutes ces expériences, les polarisations nucléaires $M$ étant faibles ($\sim 1-10$ %), on peut utiliser des modèles simples du cycle de pompage [Laloë, 68] utilisés dans les premières expériences de pompage optique avec des lampes d'hélium [Colegrove et al, 60]. En linéarisant les équations bilan d'évolution de la polarisation $M$ on obtient :

$$\frac{\partial M}{\partial t} = \frac{1-M}{T_p} - \frac{M}{T_{relax}} \tag{2.1}$$

Avec $T_p$ temps de pompage, proportionnel à l'intensité du laser absorbée $I_{abs}$ dans le plasma en présence de la lumière de pompage optique, et $T_{relax}$ temps de relaxation phénoménologique de $M$ dans les circonstances du pompage optique : $T_p$ et $T_{relax}$ dépendent à priori des caractéristiques du faisceau de pompage. Dans les circonstances habituelles du régime linéaire (faible $M$ et faible $I_{abs}$) on a $T_p \propto 1/I_{abs}$, et $T_{relax} \simeq (T_{relax})_{déch}$ indépendant du laser de pompage.

A l'équilibre, il vient :

$$\frac{1-M_{éq}}{T_p} = \frac{M_{éq}}{T_{relax}} \Rightarrow M_{éq} = \frac{1}{1+T_p/T_{relax}} \tag{2.2}$$

Pour une polarisation d'équilibre faible, on a nécessairement $T_p\ /T_{relax} \gg 1$.

Quand la lumière de pompage optique est présente, le temps de construction $\tau_{build}$ de $M$ vers $M_{éq}$ peut se mettre sous la forme :

$$\frac{1}{\tau_{build}} = \frac{1}{T_p} + \frac{1}{T_{relax}} \tag{2.3}$$

Soit en utilisant (2.2) :

$$\frac{1}{\tau_{build}} = \frac{1}{T_{relax}}(1 + \frac{M_{éq}}{1-M_{éq}}) \tag{2.4}$$

il vient :

$$T_{relax} = \frac{\tau_{build}}{1-M_{éq}} \tag{2.5}$$

ou encore :

$$T_p = \frac{\tau_{build}}{M_{éq}}. \tag{2.6}$$

Des mesures expérimentales de $\tau_{build}$ et $M_{éq}$, on peut tirer $T_{relax}$ et $T_p$ à l'aide des formules (2.5) et (2.6) respectivement. Pour l'expérience de la figure (2.14), on a par exemple $T_p \simeq 300$ s et $T_{relax} \simeq 25$ s $\ll (T_{relax})_{déch}$. Cette importante modification de la relaxation en présence de la lumière de pompage a été observée pour divers niveaux de décharge et de puissances laser. Nous avons effectué plusieurs mesures, et porté sur la figure (2.15), la variation de la relaxation

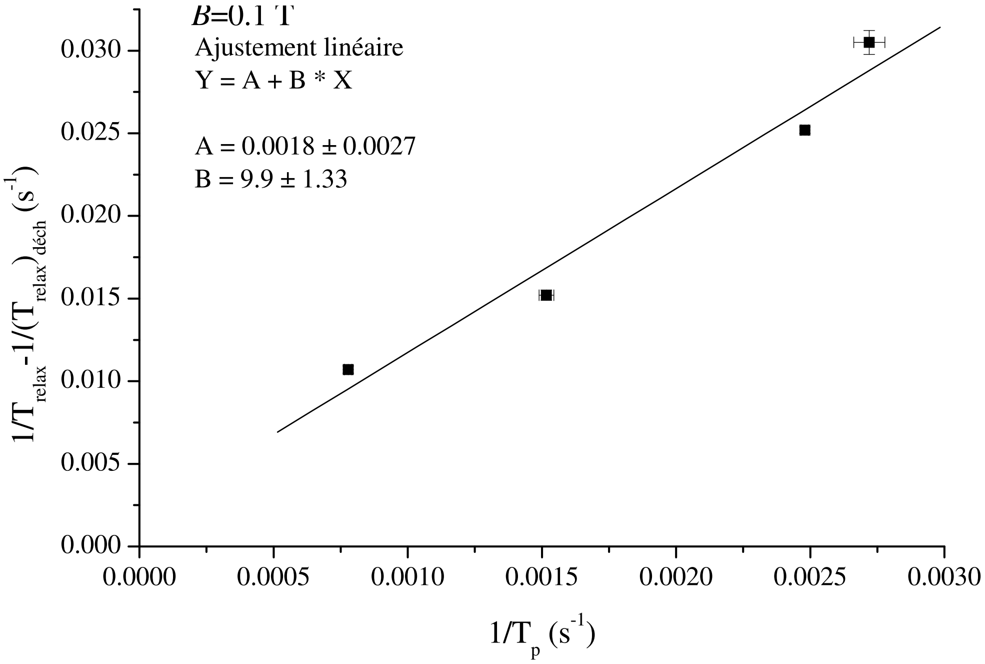


FIG. 2.15 – Taux de relaxation supplémentaire induite à 0.1 T par la lumière de pompage optique ($1/T_p \propto I_{abs}$).

$\delta = 1/T_{relax} - 1/(T_{relax})_{déch}$ de $M$ fonction de $1/T_p \propto I_{abs}$, pour différentes décharges du plasma. On est ici confronté à un processus de relaxation de $M$ qui dépend fortement de la lumière incidente à 1083 nm. Un fit linéaire donne une variation de $\frac{\Delta\delta}{\Delta(1/T_p)} = 9.9 \pm 1.3$ , qui mesure l'augmentation de la relaxation nucléaire en présence de la lumière de pompage.

### 2.2.2 Processus de relaxation de $M$

Ces observations sur le pompage optique de la cellule à 40.4 mbar, tant pour sa cinétique que pour les polarisations d'équilibre atteintes qui se révèlent peu sensibles à la puissance du laser, indiquent qu'il y a des processus de relaxation supplémentaires de la polarisation nucléaire dans le plasma qui augmentent de façon importante avec l'intensité de la lumière à 1083 nm. Nous explorons dans ce paragraphe dans quelle mesure un état moléculaire métastable pourrait être à l'origine de ce phénomène.

La molécule homonucléaire d'hélium-3 dans le niveau métastable $2^3\Sigma_u^+$ (voir figure (2.16) avec les niveaux de $He_2$) est peuplée par la cascade radiative dans le plasma. Mais, une lumière intense à 1083 nm augmente sensiblement la population dans l'état atomique $2^3$P où un atome peut former par interaction avec deux atomes dans l'état fondamental une molécule métastable : c'est un canal additionnel de formation de cette molécule métastable par collision (qui s'ajoute à celui qui fait intervenir l'état $2^3$S) . On peut trouver dans la littérature (par exemple

[Emmert et al, 88]) les taux de création suivants :

$$\mathrm{He}(2^3\mathrm{S}) + 2\mathrm{He} \overset{1.6\times10^{-34}\mathrm{cm}^6/\mathrm{sec}}{\rightarrow} \mathrm{He}_2(2^3\Sigma_u^+) + \mathrm{He} \tag{2.7}$$

$$\mathrm{He}(2^3\mathrm{P}) + 2\mathrm{He} \overset{1.5\times10^{-32}\mathrm{cm}^6/\mathrm{sec}}{\rightarrow} \mathrm{He}_2(2^3\Sigma_u^+) + \mathrm{He} \tag{2.8}$$

Si la population des atomes dans l'état $2^3$P est du même ordre de grandeur que celle des atomes dans l'état $2^3$S (cas d'un pompage intense), on voit que le deuxième processus de collision est bien plus important que le premier (100 fois plus) pour la création de molécules métastables.

Nous désignons $\delta$ le taux global de création de ces molécules métastables à partir des atomes dans l'état $2^3$S (avec un taux $\delta_S$) et des atomes dans l'état $2^3$P (avec un taux $\delta_P$). D'après (2.7) et (2.8) : on a $\delta_P/\delta_S \simeq 94$ en l'absence de pompage, et donc $\delta \simeq 95 \times \delta_S$.

En supposant que le processus de création de ces molécules métastables croît comme le carré de la pression du gaz (puisque deux atomes fondamentaux interviennent dans ces interactions), on a pour une pression de 40.4 mbar ($n_{\mathrm{He}} \simeq 9.7 \times 10^{17}$ at/cm$^3$) $1/\delta_S = 7.1$ ms et $1/\delta_P = 0.76$ ms, et pour une pression de 1 mbar $1/\delta_S = 11.4$ s et $1/\delta_P = 0.12$ s.

On s'attend à ce que $\delta$ augmente avec la population des atomes dans l'état $2^3$P, i.e. avec l'intensité de la lumière absorbée $I_{abs}$ à 1083 nm. En notant $n_S$ la densité des atomes dans l'état $2^3$S et $n_P$ la densité des atomes dans l'état $2^3$P on peut alors écrire :

$$\delta = \delta_S + \delta_P = \delta_S(1 + 94\frac{n_P}{n_S})$$

Comme nous l'avons vu dans le chapitre 1.3.2, la population des atomes dans l'état $2^3$P n'est pas une fonction linéaire de $I_{abs}$, il faut tenir compte des effets de saturation de l'absorption et/ou d'élargissement radiatif pour les fortes intensités.

En tenant compte aussi de processus de destruction tels que des collisions Penning auto-ionisantes ou des collisions avec d'autres espèces dans le plama, on s'attend à ce que la population stationnaire de ces molécules métastables dépende de la pression du gaz et de l'intensité de la lumière absorbée $I_{abs}$ à 1083 nm.

Des collisions d'échange de métastabilité entre molécule métastable et atome polarisé peuvent expliquer probablement une relaxation de $M$ proportionnelle à la densité de ces molécules. Avec de telles collisions, les molécules créeent un canal de relaxation supplémentaire pour $M$ par thermalisation rapide du moment nucléaire par couplage spin-orbite dans les nombreux états rotationnels de la molécule.

### 2.2.3 Mesure d'absorption de la raie moléculaire à 465 nm avec une source classique

Nous avons tenté de faire des mesures d'absorption en utilisant une source lumineuse classique sur la raie intense à 465 nm de la transition $2^3\Sigma_u^+ - 3^3\Pi_g$

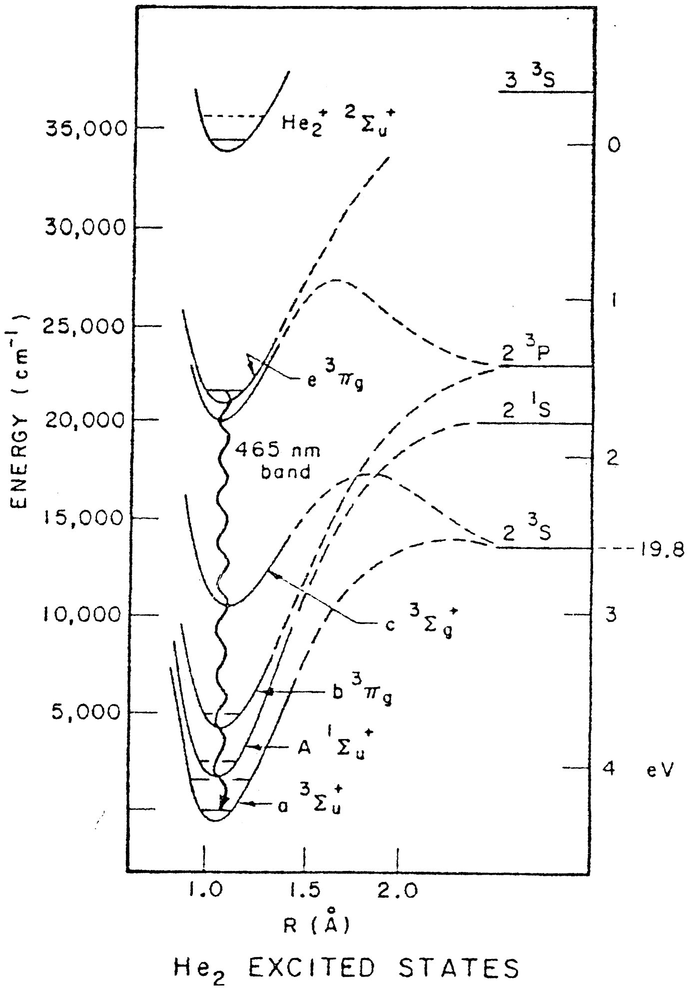


FIG. 2.16 – Schéma des premiers niveaux d'énergie de la molécule d'hélium (d'après [Lichten et al, 74]).

(voir figure 2.16). Cette raie a déjà été utilisée par divers auteurs pour observer l'évolution de la population des molécules métastables dans des expériences en "afterglow" [Myers et al, 77], [Deloche et al, 76], [Emmert et al, 88].

Le schéma du montage expérimental est représenté sur la figure (2.17). La source à 465 nm est ici une diode électroluminescente (LED) bleue émettant autour de 470 nm avec une largeur totale à mi-hauteur de 35 nm quelques mW de puissance lumineuse (Hewlett-Packard HLMP-CB15).

Dans chacune des expériences, pour augmenter la sensibilité de la mesure d'absorption, le principe de détection est basé sur la corrélation de deux modulations. On module d'une part la lumière bleue de la LED à 3 kHz ($\nu_1$) en modulant son courant d'alimentation : on ne détecte ainsi que la lumière bleue transmise et pas celle provenant de la décharge et/ou celle environnante. On module d'autre part la population des atomes d'hélium dans l'état métastable $2^3S$ à 30 Hz ($\nu_2$) en modulant la décharge radiofréquence (à 100%, en carré). Le signal est envoyé sur

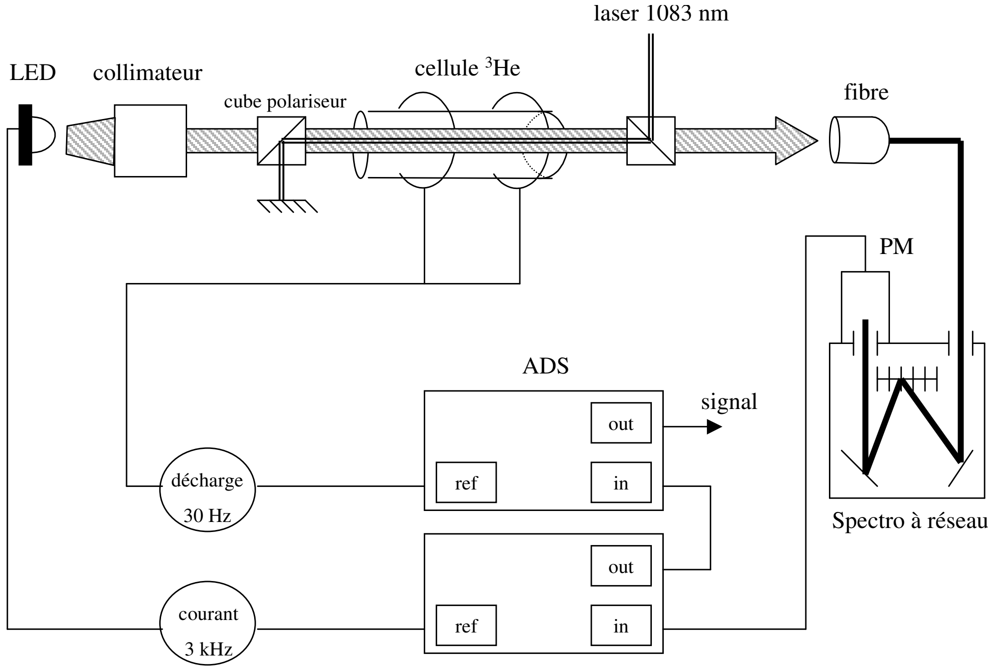


FIG. 2.17 – Schéma de l'expérience d'absorption avec une LED à 465 nm basée sur une modulation de la lumière bleue et de la décharge. La lumière bleue transmise qui est collectée par une fibre est analysée dans un spectromètre avec une fente d'entrée ouverte à 0.5 nm. Le signal de sortie de cette chaîne de détection permet de mesurer la fraction absolue du bleu absorbé par rapport à une intensité moyenne transmise. Pour augmenter l'intensité lumineuse à 1083 nm dans la cellule, deux cubes polariseurs croisés permettent un aller-retour de la lumière.

un premier amplificateur à détection synchrone (ADS) ayant comme référence la fréquence de modulation du courant de la LED ($\nu_1$) et une constante de temps de 5 ms.

Le signal de sortie de cet ADS est lui-même envoyé sur un deuxième ADS ayant comme référence la fréquence de modulation de la décharge radiofréquence ($\nu_2$) et une constante de temps de 1 s. Le signal de sortie de cette chaîne de détection correspond donc à la différence entre la décharge allumée et éteinte du bleu transmis. On a également accès à la fraction absolue du bleu absorbé par rapport à une intensité moyenne transmise (sortie du premier ADS).

Un collimateur ($f$ = 8 mm) permet d'avoir un faisceau approximativement parallèle de lumière bleue qui a une taille comparable à celle du tube de la cellule d'hélium-3 pour bien recouvrir la zone excitée du plasma. Après avoir traversé la cellule, le faisceau bleu est envoyé via une fibre dans un spectromètre à réseau de grande résolution permettant de filtrer spectralement la lumière bleue, en règlant l'ouverture de la fente d'entrée à 0.5 nm.

A la sortie de ce spectromètre, un photomultiplicateur (PM) permet de collecter le signal à 465 nm qui est envoyé sur la chaîne de double démodulation décrite auparavant. Dans ce montage, à la fin de la chaîne de détection, avec une sensibilité de $10^{-3}$ sur la fraction absolue du bleu absorbé, nous n'avons pas vu de signal d'absorption même en présence de lumière à 1083 nm.

Une deuxième série d'expériences a consisté à envoyer directement la lumière bleue sur le PM en utilisant un filtre interférentiel centré autour de 467.5 nm et avec une largeur totale à mi-hauteur de 5 nm. Ceci permet d'éliminer d'éventuels bruits microphoniques dans la fibre qui amène la lumière dans le spectromètre et/ou dans le spectromètre lui-même. On a obtenu une sensibilité de $10^{-4}$ sur la fraction absolue du bleu absorbé. Mais avec un filtre 10 fois plus large que la largeur de la fente du spectromètre (0.5 nm) auparavant, on obtient finalement la même sensibilité que précédemment, toujours sans observer d'absorption.

Divers essais ont été réalisés pour comprendre cette limitation de la sensibilité. On a tout d'abord soustrait le bruit de la LED avec un dispositif séparateur, ici un cube polariseur, qui permet de prélever de la lumière bleue avant qu'elle ne rentre dans la cellule. Cette lumière est alors envoyée sur une photodiode dont le signal est soustrait à celui du PM qui voit lui la lumière qui a traversé la cellule à travers le spectromètre. Là encore, on a pas vu d'amélioration de la sensibilité même en balayant en fréquence le spectromètre.

On peut essayer d'évaluer le taux d'absorption des molécules $K_{mol}$ pour une intensité $I(z) = I(z=0)\exp(-Kz)$ d'un faisceau lumineux se propageant suivant l'axe $Oz$ dans un milieu absorbant, dans les conditions de notre expérience en connaissant les absorptions atomiques $K_{at}$.

Dans nos conditions de décharge, on a typiquement $K_{at} \sim 10$ %/cm sur $C_9$ d'où $K_{mol} \sim K_{at} \times N/n_S \times \left(\lambda_{at}^2/\Delta\lambda_{at}\right) / \left(\lambda_{mol}^2/\Delta\lambda_{mol}\right) \times f_{mol}/f_{at}$, en faisant intervenir les rapports de densités et de forces d'oscillateur, les longueurs d'onde $\lambda$ des transitions et leur largeur $\Delta\lambda$.

Voici ce que l'on trouve dans la littérature pour une pression comparable à notre expérience :

*Dans [Deloche et al, 76], on a des densités comparables de l'ordre de quelques $10^{11}/\mathrm{cm}^3$ pour les deux espèces métastables atomiques et moléculaires.

*Dans [Myers et al, 77], on trouve une largeur de raie à 465 nm des composantes rotationnelles $(\Delta_\lambda)_{FWHM} \sim 0.5$ nm. Cette largeur correspond à $\sim 350$ largeurs Doppler de l'hélium-3 (2 GHz FWHM à 300 K).

*Enfin dans [Stevefelt et al, 72], un calcul donne une force d'oscillateur égale à 0.119 pour la transition $2^3\Sigma_u^+ - 3^3\Pi_g$, qui est comparable à celle de $C_9$, égale à 0.37.

On peut en déduire une absorption $K_{mol} \sim 1.7 \times 10^{-3}$ %/cm, soit dans un plasma sur une longueur de 8 cm, $K_{mol} \sim 1.36 \times 10^{-2}$%. Ceci correspond à la limite de notre sensibilité pour les mesures d'absorption. En fait, on verra dans le paragraphe suivant d'une part que la densité des molécules métastables est plus faible que celles escomptée (d'un facteur 2 à 5, mais nos conditions de plasma à l'intérieur du tube de la cellule à 40.4 mbar sont différentes de celles de [Deloche et al, 76]), d'autre part que la largeur des composantes rotationnelles $(\Delta_\lambda)_{FWHM} \sim 0.01$ nm mesurée dans nos expériences est 50 fois moins importante que celle de [Myers et al, 77] (dont nous concluons qu'il s'agit d'une largeur instrumentale). On s'attend alors à une absorption d'au mieux de quelques $10^{-4}\%$ sur 8 cm : il est en fait donc normal, a posteriori, de n'avoir rien pu observer dans nos tentatives de mesure d'absorption avec des sensibilités expérimentales de $10^{-3}$.

Nous avons en revanche observé un effet systématique de la modification du plasma par la lumière incidente à 1083 nm. A l'oeil nu, on peut voir un changement de couleur (apparition d'un pinceau orangé) dans la lumière émise par le plasma, là où le faisceau laser traverse la cellule, lorsqu'il est à résonance avec une transition atomique. En faisant une analyse de la fluorescence de la lumière de la décharge avec le spectromètre précédent, on observe effectivement à 640.1 nm (raie moléculaire $3^3\Sigma_u^+ - 2^3\Pi_g$) une augmentation de la fluoresence. Avec un laser à 1083 nm accordé sur les transitions atomiques $C_2$-$C_5$ (non résolues), pour une intensité lumineuse de 15 W/cm$^2$ on mesure une augmentation de signal d'un facteur 3.35.

### 2.2.4 Mesure de la variation de la population du niveau moléculaire métastable induite en présence de lumière à 1083 nm

Nous avons engagé une collaboration avec le Laboratoire de Photophysique Moléculaire d'Orsay pour faire des expériences de fluorescence induite par laser (Laser Induced Fluorescence ou LIF), autour de 465 nm, pour étudier la variation de population de ces molécules métastables induite par la lumière à 1083 nm dans le tube d'hélium-3 à 40.4 mbar. Toutes ces expériences ont été faites dans le champ magnétique terrestre, sans contrôle particulier de la polarisation du laser à 465 nm ou à 1083 nm.

#### Dispositif expérimental

Le schéma de l'expérience est représenté sur la figure (2.18). Le colorant du laser pulsé (Lambda Physik-LPD3000), qui est pompé par un laser excimère à 300 nm (Lambda Physik-LPX100), permet d'émettre de 425 nm à 520 nm. A 465 nm, le laser permet d'obtenir pour une cadence de répétition de 20 Hz. Il fournit habituellement une puissance de 10 $\mu$J/pulse avec une largeur $\Delta_\lambda \sim 6.1 \times 10^{-3}$ nm à 584 nm. On excite la transition moléculaire $2^3\Sigma_u^+ - 3^3\Pi_g$ à 465 nm ($\Delta_v = 0$) et on détecte la fluorescence des composantes rotationnelles de la transition sur un photomultiplicateur (Hamamatsu-R2059) dont le signal est envoyé sur un oscilloscope digital (LeCroy-9310M 300 Mhz). Ce signal est ensuite lu et moyenné par un PC. Afin d'être insensible aux parasites de diffusion de la lumière du laser excitateur, on observe la fluorescence à 505 nm ($\Delta_v = -1$) avec un monochromateur sur lequel on fait l'image de la cellule à l'aide d'une lentille cylindrique.

Deux miroirs dichroïques autour de 1.08 $\mu$m qui sont $R_{\max}$ à 45° permettent

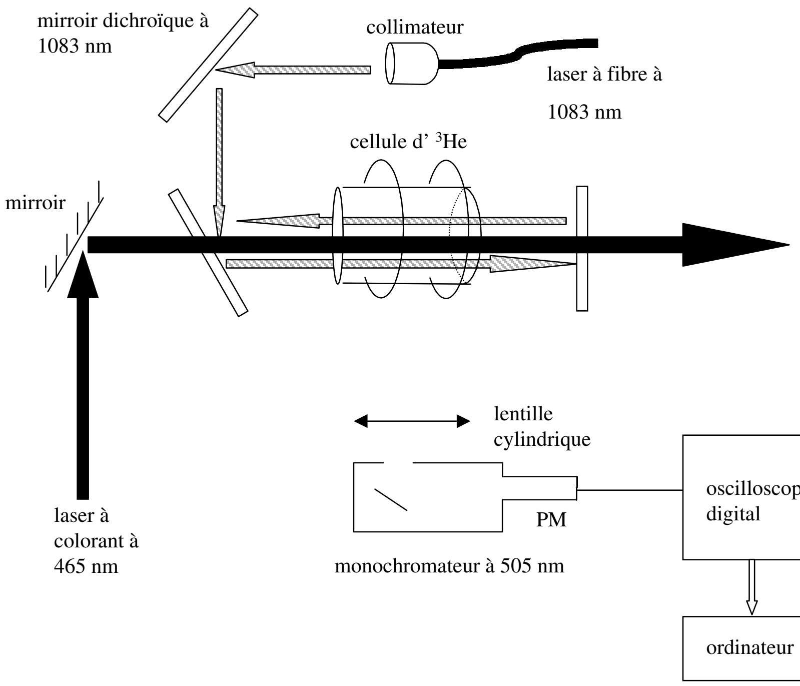


FIG. 2.18 – Schéma du montage LIF. Un laser pulsé à colorant permet d'exciter la transition moléculaire $2^3\Sigma_u^+ - 3^3\Pi_g$ à 465 nm ($\Delta_v = 0$). On détecte la fluorescence à 505 nm ($\Delta_v = -1$) avec un monochromateur sur lequel on fait l'image de la cellule à l'aide d'une lentille cylindrique.

d'injecter le laser à fibre 2 W Keopsys de 1.64 GHz FWHM (voir 1.3.4) à 1083 nm dans la cellule en évitant les retours de lumière du laser pulsé. Un dernier miroir renvoit le faisceau de pompage optique dans la cellule pour augmenter l'absorption.

On a enregistré la fluorescence de la raie moléculaire $2^3\Sigma_u^+ - 3^3\Pi_g$ avec des balayages linéaires dans le temps de la lumière à 465 nm. On a étudié l'influence de la densité de puissance de la lumière à 1083 nm (jusqu'à 225 Watts/cm$^2$) et de la pression de cellules scellées (de 8.6 à 40.4 mbar).

### Identification des spectres

La figure (2.19) présente un spectre des diverses composantes rotationelles de la transition électronique $2^3\Sigma_u^+ - 3^3\Pi_g$.

En utilisant les résultats de l'appendice 2, une simulation des différentes branches R ($\Delta J = +1$), P ($\Delta J = -1$) et Q ($\Delta J = 0$) permet d'identifier chacune des raies avec un ajustement des constantes rotationnelles par une méthode des moindres carrés sur les positions (voir paragraphe suivant).

Les constantes rotationnelles utilisées ici pour cette simulation ont été tirées de celles trouvées dans la littérature [Herzberg et al, 50] pour les molécules d'$^4He_2$ en faisant une correction isotopique de $\sqrt{\frac{4}{3}}$, rapport des masses de l'hélium-3 et de l'hélium-4 (voir appendice 2).

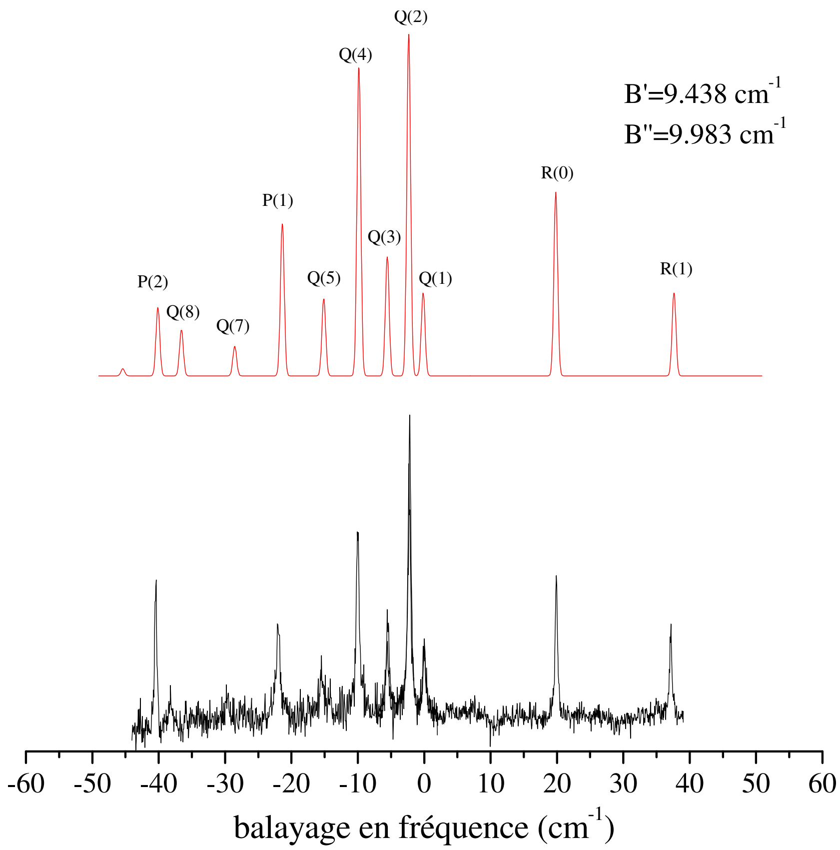


FIG. 2.19 – *En bas* : spectre expérimental des composantes rotationnelles de la raie moléculaire $2^3\Sigma_u^+ - 3^3\Pi_g$ de l'hélium-3 avec des balayages linéaires dans le temps de la lumière à 465 nm. *En haut* : identification des composantes rotationelles (plus nombreuses que dans l'hélium-4 qui n'a pas de spin nucléaire) des branches R($\Delta J = 1$), P ($\Delta J = -1$) et Q ($\Delta J = 0$) avec un ajustement par une méthode des moindres carrés sur les positions.

Remarque : le spectre est beaucoup plus riche que ceux trouvés dans les références [Myers et al, 77], [Emmert et al, 88] du fait que l'on a affaire ici à des atomes d'$^3$He, qui ont un spin nucléaire I = 1/2, et non à des atomes d'$^4$He.

### Constantes rotationnelles

Si l'on veut déterminer avec précision les constantes rotationnelles B'=B($3^3\Pi_g$) et B"=B($2^3\Sigma_u^+$), l'approximation du rotateur rigide n'est pas suffisante. Il faut prendre en compte la distorsion centrifuge de la molécule et/ou le fait qu'elle puisse vibrer.

Sur le graphe (2.20), on a reporté les écarts en énergie des différentes composantes rotationnelles de la branche Q pour diverses approximations : il n'y a pas d'effet significatif de la distorsion centrifuge (effet du deuxième ordre). L'effet le plus important vient de la prise en compte de la vibration de la

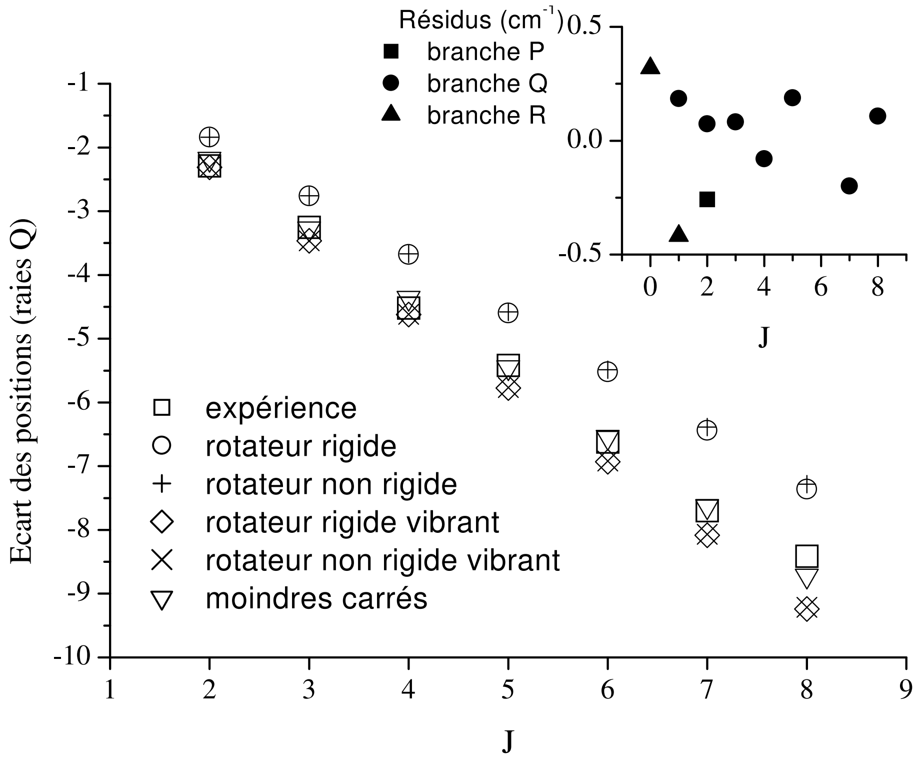


FIG. 2.20 – Détermination des constantes rotationnelles avec diverses approximations du rotateur. Le meilleur ajustement des constantes rotationnelles avec les valeurs expérimentales est obtenu par une méthode des moindres carrés pour ajuster simultanément les positions de toutes les branches. Les constantes obtenues diffèrent de 5% des valeurs publiées, ce qui est au delà de nos incertitudes expérimentales. *Insert* : écarts à l'ajustement pour les trois branches.

molécule. Le meilleur ajustement des constantes rotationnelles avec les valeurs expérimentales est obtenu par une méthode des moindres carrés sur les positions. Ces constantes diffèrent de 5% des valeurs publiées et donnent une dispersion de $\pm 0.4$ cm$^{-1}$autour des valeurs expérimentales (et de seulement $\pm 0.2$ cm$^{-1}$pour les composantes de la branche Q). Cette différence faible, mais au delà de nos incertitudes expérimentales, entre les valeurs publiées et celles trouvées n'est pas expliquée.

On a aussi enregistré le spectre d'une cellule avec un mélange $^3$He(6 torr)/$^4$He(18 torr) où on s'attend à avoir trois sortes de molécules $^3He_2$, $^4He_2$ et $^3$He-$^4$He. Le grand nombre de composantes rotationnelles n'a pas pu permettre de déduire avec précision les constantes rotationnelles pour l'$^4He_2$ et de les comparer aux valeurs publiées.

En tout cas, toutes les composantes rotationnelles de l'$^3He_2$ sont clairement identifiées et on peut ainsi étudier l'influence de la lumière de pompage optique à 1083 nm sur ces molécules métastables.

Remarque : la valeur de B pour les molécules d'hélium est de l'ordre de

10 cm$^{-1}$, ce qui est très inférieur à $k_BT$ à 300 K ($\sim$ 200 cm$^{-1}$). A l'équilibre thermique, les niveaux rotationnels sont peuplés avec la distribution de population $N_J$ suivante :

$$N_J = 2(J+1)\exp-(\mathrm{B}J(J+1)/k_BT)$$

On trouve que les amplitudes relatives des composantes rotationnelles correspondent à une température $T$ de 338 $\pm$ 23 K. Compte tenu du fait que la température de la cellule et du gaz sont supérieures à la température ambiante (on dépose une puissance radiofréquence de l'ordre d'un Watt dans la décharge), ce résultat est satisfaisant et indique que les molécules sont bien thermalisées.

### Augmentation de la population des molécules métastables avec la lumière à 1083 nm

**Résultats expérimentaux** On a trouvé la même augmentation pour toutes les composantes rotationnelles. Par simplicité, on ne parlera donc que de l'intense composante Q(2) (branche Q, J=2). Dans chacune de ces expériences, on a le signal moléculaire le plus important pour les décharges les plus intenses.

Sur le graphe (2.21), on peut voir la variation relative de l'intensité de Q(2),

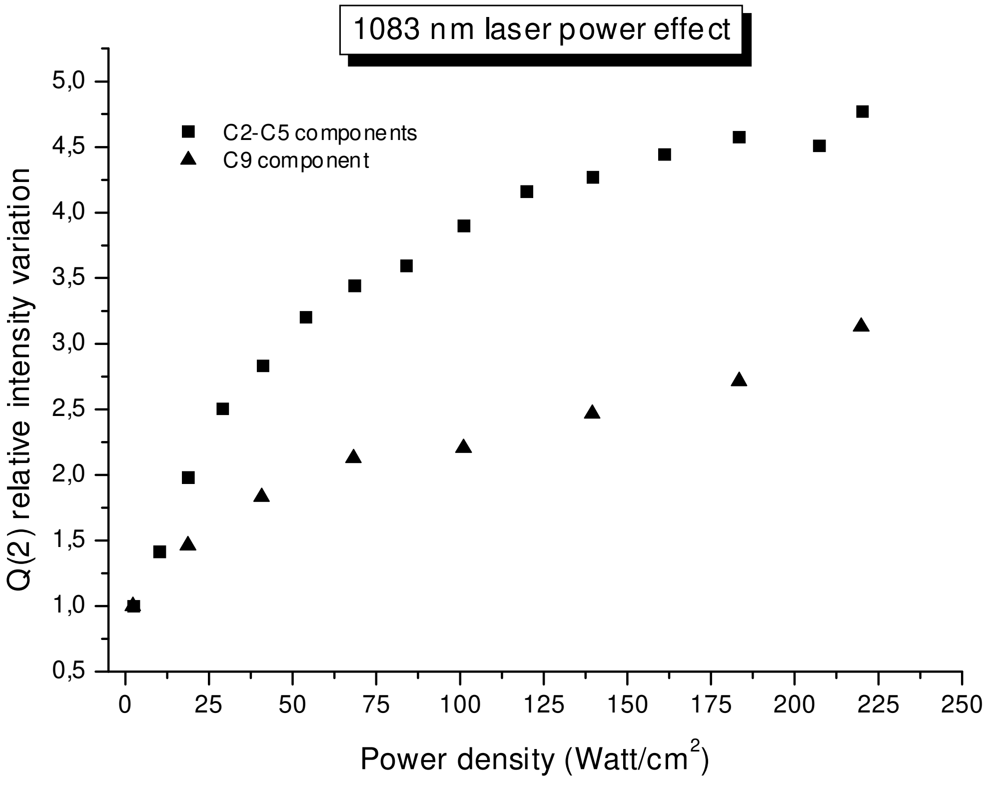


FIG. 2.21 – Variation relative de l'intensité de Q(2) en fonction de la densité de puissance de la lumière à 1083 nm sur $C_2$-$C_5$ et $C_9$.

sur le tube de 40.4 mbar, en fonction de la densité de puissance incidente du laser à 1083 nm. On observe une augmentation jusqu'à un facteur $4.75 \pm 10\%$ de la population des molécules métastables $N$ pour la transition $C_2$-$C_5$ qui correspond à la plus forte absorption et d'un facteur $2.75 \pm 10\%$ pour $C_9$, transition utilisée pour le pompage optique.

Cette variation n'est pas linéaire avec la densité de puissance incidente du laser à 1083 nm mais on sait que l'absorption de la lumière à 1083 nm, et donc la population des atomes dans l'état $2^3$P, tend à saturer aux fortes densités de puissance (voir chapitre [PO standard]).

Pour cette même cellule, nous avons trouvé sur la sphère une augmentation de $N$ jusqu'à un facteur $2.03 \pm 10\%$ pour la transition $C_2$-$C_5$.

Nous avons aussi observé les effets de pression sur la population des molécules métastables sur des cellules cylindriques (5 cm de long et 5 cm de diamètre), pour des pressions de 8.6 et 32.3 mbar : on a trouvé une variation de population des molécules métastables jusqu'à respectivement un facteur $1.7 \pm 10\%$ et $2.4 \pm 10\%$ avec le laser à 1083 nm sur C2-C5.

Pour interpréter ces résultats, nous nous sommes intéresssés aux populations stationnaires des équations d'évolution des deux espèces métastables : les atomes dans l'état métastable $2^3$S et les molécules dans l'état métastable $2^3\Sigma_u^+$ avec des densités respectives $n_S$ et $N$.

Nous allons dans un premier temps décrire les processus microscopiques qui nous permettront d'écrire les équations d'évolution de $n_S$ et $N$, puis interpréter les divers résultats obtenus.

**Equation d'évolution des espèces métastables** Les atomes et les molécules métastables diffusent librement sous l'action des gradients de leurs densités, qui sont supposées nulles aux bords de la cellule (désexcitation au contact des parois). Le terme de diffusion dans l'équation d'évolution de ces particules s'écrit sous la forme :

$$\frac{\partial n_S}{\partial t} = D_{at}\nabla^2 n_S \text{ et } \frac{\partial N}{\partial t} = D_{mol}\nabla^2 N \tag{2.9}$$

où $D_{at}$ et $D_{mol}$ représentent respectivement les coefficients de diffusion des atomes et des molécules.

On a pris en compte la réaction de conversion des atomes métastables en molécules métastables qui est une réaction à trois corps avec deux atomes dans l'état fondamental (2.7), dont on peut écrire la contribution sous la forme :

$$\frac{\partial n_S}{\partial t} = -\delta_S P^2 n_S \text{ et } \frac{\partial N}{\partial t} = +\delta_S P^2 n_S \tag{2.10}$$

avec $P$ la pression du gaz et $\delta_S$ le taux de création à cette pression.

Les processus de collisions ionisantes entre métastables peuvent être décrits par deux mécanismes :

– Tout d'abord, des collisions Penning auto-ionisantes des espèces métastables qui donnent des termes de la forme :

$$\frac{\partial n_S}{\partial t} = -\beta_{at} n_S^2 \text{ et } \frac{\partial N}{\partial t} = -\beta_{mol} N^2 \tag{2.11}$$

avec $\beta_{at}$ et $\beta_{mol}$ les taux de destruction Penning respectivement pour les atomes et les molécules.

– Puis des collisions entre métastables atomiques et moléculaires qui donnent :

$$\frac{\partial n_S}{\partial t} = -\frac{1}{2}\alpha n_S N \text{ et } \frac{\partial N}{\partial t} = -\frac{1}{2}\alpha n_S N \tag{2.12}$$

avec $\alpha$ le taux de destruction entre les atomes et les molécules.

Ces espèces métastables peuvent aussi être créées à partir de mécanismes faisant intervenir de nombreuses espèces. On peut penser aux recombinaisons électron-ion tant pour les atomes (capture d'électron et ionisation ...) que pour les molécules (capture d'électron et ionisation, autoionisation, relaxation vibrationnelle, recombinaison dissociative ...). On écrit :

$$\frac{\partial n_S}{\partial t} = +création_{n_S} \text{ et } \frac{\partial N}{\partial t} = +création_N \tag{2.13}$$

avec $création_{n_S}$ et $création_N$ les taux de création respectivement pour les atomes et les molécules dans le plasma.

Enfin pour évaluer l'influence de la lumière de pompage optique mettant en jeu les atomes dans l'état $2^3$P (avec une densité $n_P$), on a pris en compte la réaction de conversion des atomes $2^3$P en molécules métastables qui est une réaction à trois corps avec deux atomes dans l'état fondamental (2.8). On a pour l'équation d'évolution des molécules :

$$\frac{\partial N}{\partial t} = +\delta_P P^2 n_P \tag{2.14}$$

avec $P$ la pression du gaz et $\delta_P$ le taux de création à cette pression.

On trouve ainsi les équations globales d'évolution suivantes pour les deux espèces métastables :

$$\frac{\partial n_S}{\partial t} = D_{at}\nabla^2 n_S - \delta_S P^2 n_S - \beta_{at} n_S^2 - \frac{1}{2}\alpha n_S N + création_{n_S} \tag{2.15}$$

$$\frac{\partial N}{\partial t} = D_{mol}\nabla^2 N + \delta_S P^2 n_S - \beta_{mol} N^2 - \frac{1}{2}\alpha n_S N + création_N + \delta_P P^2 n_P \tag{2.16}$$

Dans [Fitzsimmons et al, 68], on trouve pour l'hélium-3 $D_{at} = 554 \pm 30$ cm$^2$torr/s. On peut évaluer un coefficient de diffusion pour les molécules métastables $D_{mol} \simeq D_{at}/\sqrt{2}$ [1].

[1]Dans la littérature, nous n'avons pas trouvé pour la molécule d'$He_3^2$ de coefficient de diffusion. Dans [Deloche et al, 76], on trouve pour les deux espèces métastables dans l'$^4$He un coefficient de diffusion $D_{mol} = 305 \pm 10$ cm$^2$torr/s et $D_{at} = 420 \pm 10$ cm$^2$torr/s soit $D_{mol}/D_{at} \simeq \sqrt{2}$ (dû au rapport des masses). Il est donc raisonnable de faire la même hypothèse dans l'$^3$He.

Dans [Emmert et al, 88], on trouve $\delta_S = 0.16 \pm 0.04$ torr$^{-2}$/s et $\delta_P = 93.75 \times$ $\delta_P = 15 \pm 4.1$ torr$^{-2}$/s.

Dans [Deloche et al, 76], on trouve $\beta_{at} = 1.5 \times 10^{-9} \pm 0.3$ cm$^3$/s, $\beta_{mol} = 1.5 \times 10^{-9} \pm 0.5$ cm$^3$/s et $\alpha = 2.5 \times 10^{-9} \pm 1.5$ cm$^3$/s.

Dans nos expériences, compte tenu de la symétrie cylindrique de révolution autour de l'axe des distributions spatiales des densités des particules, la seule coordonnée de position à considérer dans les équations d'évolutions est la distance r à l'axe de la cellule.

Le système d'équations couplées aux dérivées partielles par rapport au temps t et à la position r a été résolu numériquement. Le programme calcule les solutions n($r$,$t$) pour les densités des deux espèces métastables considérées à partir de valeurs de distributions initiales. Pour la compréhension des variations de population de l'espèce moléculaire dans les expériences de LIF, on ne s'intéressera ici qu'aux solutions stationnaires des équations d'évolution. On a calculé les solutions de ce système sur des échelles de temps de quelques temps de diffusion $\tau$ typiques ($\tau \sim R^2/D$ avec $R$ rayon de la cellule considérée et $D$ temps de diffusion), avec des pas d'intégration temporels $\Delta t << \tau$.

**Distribution spatiale des espèces métastables** Nous avons considéré une dépendance spatiale des taux de création des espèces métastables de la forme :

$$1 - (r/R)^i \tag{2.17}$$

avec $R$ rayon de la cellule et $i$ un exposant qui permet d'avoir des profils différents.

Sur le graphe (2.22), on a simulé pour différents exposants $i$ les solutions stationnaires pour la densité des atomes métastables. Pour toutes les simulations dans la suite, on a pris une distribution avec $i = 2$ (profil parabolique). Dans les expériences de LIF, le petit faisceau du laser à colorant est centré sur la cellule, on ne sonde que les molécules qui sont proches de l'axe de la cellule : on ne retiendra que la valeur des solutions pour $r = 0$.

### Tube de la cellule à 40.4 mbar : estimation des paramètres du modèle

**Evaluation de $création_{n_S}$ et de $création_N$** Pour évaluer le paramètre de création $création_{n_S}$ des atomes métastables, on a réalisé une mesure d'absorption avec une diode laser amplifiée IRE Polus 0.5 W pour évaluer une densité typique d'atomes métastables et les effets de saturation aux fortes densités de puissance dans une décharge comparable à celle des expériences de LIF. On sait que ce laser a des caractéristiques spectrales comparables à celles du laser Keopsys 2 W utilisés dans les expériences de LIF. Cette mesure a été faite dans le champ magnétique terrestre, sans contrôle particulier de la polarisation du laser à 1083 nm, pour se placer dans des conditions semblables à celles des expériences.

Divers degrés d'atténuation du faisceau ont permis de faire varier la densité de puissance lumineuse incidente jusqu'à 15 W/cm$^2$ (figure 2.23). Les absorptions étant fortes à faible densité de puissance, on a corrigé les résultats obtenus en

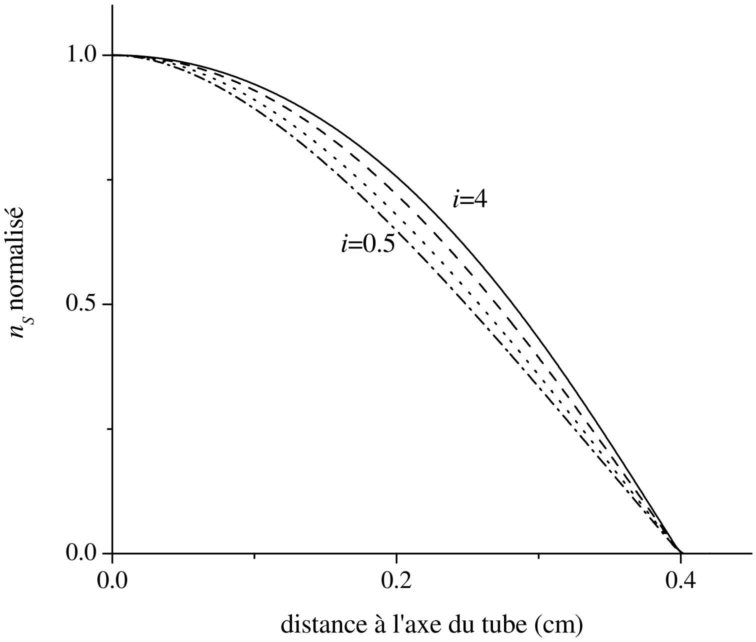


FIG. 2.22 – Effet d'une dépendance spatiale des taux de création des espèces métastables du type $1-(r/R)^i$. Entre $i=4$ et $i=0.5$, on a une variation de la densité des atomes ne dépassant pas 20%. Les solutions stationnaires sont donc assez peu sensibles à cette dépendance spatiale.

calculant exp(-z/$\Lambda$) avec z la longueur du plasma dans la cellule et $\Lambda$ l'épaisseur optique. Les absorptions typiques dans le tube pour les faibles densités de puissance sont de l'ordre de 11%/cm $\pm$1% avec le laser sur la transition $C_9$. En utilisant les résultats du calcul d'absorption des sous-niveaux Zeeman pour la transition $C_9$, on trouve pour cette absorption une densité de métastable $n_S \simeq 3.5\times 10^{11}$ at/cm$^3$.

Dans les simulations, pour avoir une population stationnaire des atomes métastables comparable, il faut un paramètre $création_{n_S} \sim 6.4 \times 10^{14}$ at/cm$^3$/s. Pour comprendre cette valeur on peut remarquer qu'en régime stationnaire le taux de création égale celui de destruction, lui-même au moins égal au taux de désexcitation sur la paroi. Le temps de vie des atomes métastables correspond dans une cellule cylindrique au temps d'amortissement du mode de diffusion vers la paroi le plus lent [Tastevin, 87] (p. 108). Pour le tube de 10 cm de long et de diamètre 0.8 cm de notre cellule, on trouve $\tau_{11} = 1.5$ ms à 40.4 mbar. On trouve ainsi un rythme de disparition de ces atomes $n_S/\tau_{11} \sim 2.3\times 10^{14}$ at/cm$^3$/s, qui est effectivement du même ordre de grandeur que $création_{n_S}$ trouvé dans les calculs. La différence entre ces deux résultats vient de la conversion des atomes métastables en molécules métastables, qui est prise en compte dans les simulations et qui introduit un processus de disparition nécessairement compensé par un taux de création supérieur.

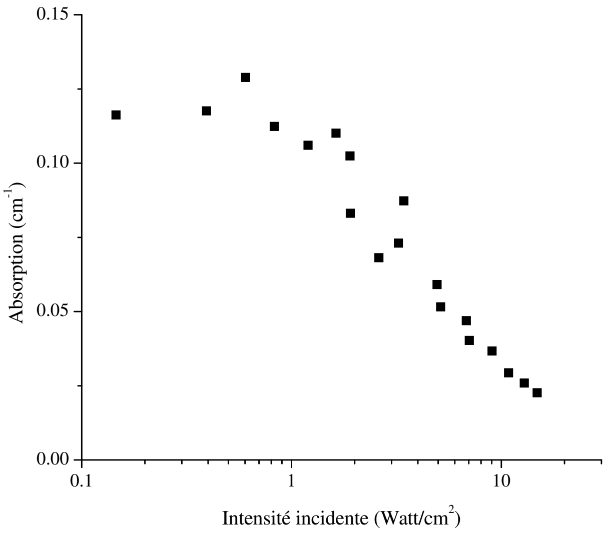


FIG. 2.23 – Absorption dans le tube de la cellule à 40.4 mbar avec une diode laser amplifiée ($n_S \simeq 3.5 \times 10^{11}$ at/cm$^3$).

**Evaluation d'un minorant du taux de création des molécules métastables** Pour estimer un minorant du taux de création $création_N$ des molécules métastables dans nos expériences, on a comparé l'intensité de la lumière de fluorescence de la raie atomique à 588 nm (transition $3^3$D-$2^3$P$_0$) $\xi_{at}$ et celle de la raie moléculaire à 465 nm (transition $2^3\Sigma_u^+ - 3^3\Pi_g$) $\xi_{mol}$. Lorsqu'un atome métastable est détruit, un autre atome métastable le remplace via la cascade radiative : le signal de fluorescence des photons à 588 nm est donc proportionnel au taux de création des atomes métastables $création_{n_S}$. Le même raisonnement pour les molécules métastables avec la raie à 465 nm qui est l'un des canaux, parmi d'autres, de création des molécules dans la cascade radiative du plasma conduit à estimer un minorant de $création_N$.

Expérimentalement, on détecte la fluorescence atomique à 588 nm et moléculaire à 465 nm avec un monochromateur sur lequel on fait l'image du tube de la cellule de 40.4 mbar à l'aide de la même lentille cylindrique. On trouve un signal de fluorescence moléculaire (à 465 nm) 10 fois plus faible que celui de fluorescence atomique (à 588 nm). Négligeant ici les variations de sensibilité de la détection avec la longueur d'onde, on estime un rapport de taux de création $création_N \geq création_{n_S}/10$.

Sur la figure (2.25), on a reporté les augmentations de populations stationnaires des molécules pour divers taux de création $création_N$ avec des densités atomiques stationnaires $n_S \simeq 3.39 \times 10^{11}$ at/cm$^3$. Le minorant estimé ici est compatible avec les valeurs mesurées, tandis qu'une valeur nettement supérieure semble exclue.

**Effet de la lumière à 1083 nm** On a choisi un profil de distribution spatial gaussien pour le laser à 1083 nm qui peuple l'état $2^3$P avec une largeur de 0.2 cm FWHM (déduite de la variation de la puissance recueillie après traversée de diaphragmes de diamètre connu). On écrit la population des atomes dans l'état $2^3$P $n_P$ en introduisant un paramètre $fraclas$ tel que $n_P = fraclas \times n_S$. Expérimentalement, pour un laser multimode avec un bon recouvrement spectral du profil Doppler d'absorption des atomes et une grande densité de puissance, on peut au mieux égaliser les populations du $2^3$P et du $2^3$S, soit $fraclas \leq 1$.

Pour comparer les résultats des calculs aux résultats expérimentaux (figure 2.21), il faut au préalable convertir les densités de puissance expérimentales $\rho$ (Watts/cm$^2$) en population dans l'état $2^3$P (connaissant $n_S$). Du profil d'absorption (figure 2.23), on peut tirer une forme analytique du modèle décrit au chapitre [PO standard] : on trouve un $X_S = 0.5$ en polarisation $\sigma_+$. On peut alors obtenir les populations $n_P$ à partir des absorptions par cm $\Lambda^{-1}(\rho)$ avec :

$$n_P = \frac{\rho \times \Lambda^{-1}}{\epsilon} \tau_P \tag{2.18}$$

où $\tau_P$ est le temps de vie radiatif de l'état $2^3$P ($\tau_P = 10^{-7}$ sec) et $\epsilon$ est l'énergie d'un photon à 1083 nm.

Dans les expériences de LIF, la lumière à 1083 nm passe une première fois dans la cellule puis, ce qui sort est renvoyé à nouveau grâce à un miroir à 1083 nm. Pour trouver la densité de puissance équivalente après un aller retour pour une densité de puissance incidente $\rho_i$ compte tenu de l'absorption, on définit une densité moyenne de puissance $\langle\rho\rangle$ dans la cellule avec un plasma de 8 cm de long avec :

$$\langle\rho\rangle = 2\rho_i \exp(-8/\Lambda(\langle\rho\rangle)), \tag{2.19}$$

et on recherche graphiquement les solutions du type :

$$\Lambda(\langle\rho\rangle) = \frac{8}{\log(2\rho_i) - \log(\langle\rho\rangle)} \tag{2.20}$$

Sur le graphe (2.24), on a représenté pour les intensités de puissance incidentes expérimentales les solutions graphiques de (2.20). On peut remarquer qu'il y a des familles de courbes correspondant à un comportement bistable à partir de $\rho_i \sim 20$ W/cm$^2$.

Sur le graphe (2.25), on a représenté pour différents taux de création de molécules $création_N$, la variation relative de la population des molécules en fonction de $n_P$. Les points expérimentaux ont une dépendance beaucoup plus forte en $fraclas$ que les simulations. A ce stade, on peut raisonnablement supposer que le calcul de la population des atomes dans l'état $2^3$P n'est pas totalement satisfaisant. En effet dans la courbe analytique tirée du modèle de calcul d'absorption, on ne tient pas compte du fait qu'à forte densité de puissance, il puisse y avoir un élargissement radiatif et donc plus d'atomes dans l'état $2^3$P. En tout cas, on a un encadrement de la création des molécules entre une densité de molécules divisée par 5 ($création_N = création_{n_S}/1.19$) et divisée par 2 (ligne horizontale supérieure sur la figure (2.25), $création_N = création_{n_S}/2.6$). Dans cet encadrement, on retrouve le minorant de $N$ trouvé précédemment : on peut donc évaluer une densité de molécules comprise entre $7 \times 10^{10}$ mol/cm$^3$ et $1.75 \times 10^{11}$ mol/cm$^3$.

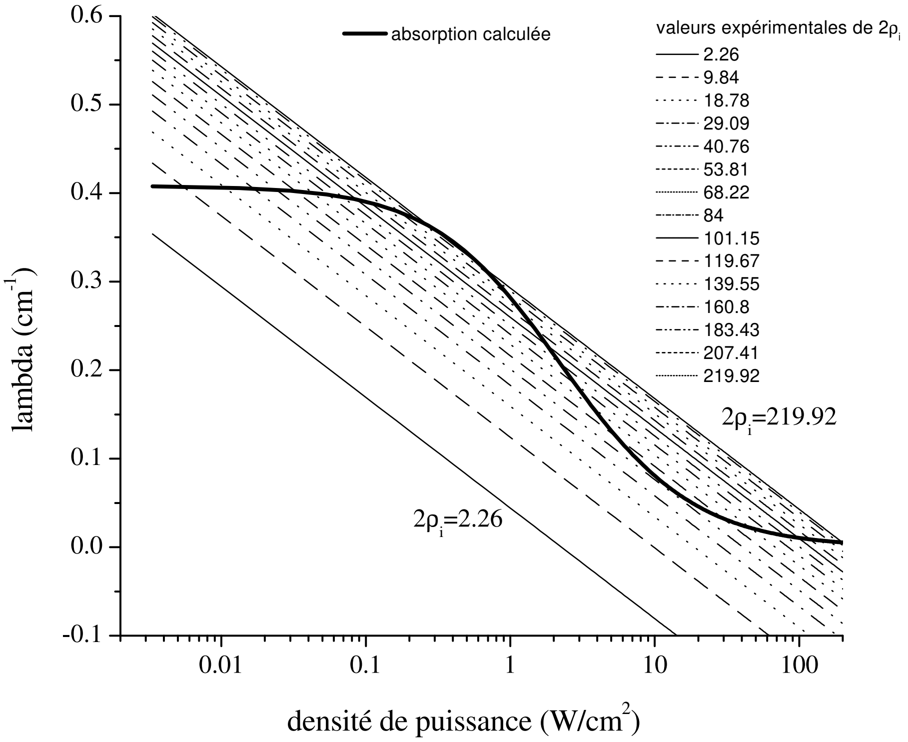


FIG. 2.24 – Solutions graphiques du type $\Lambda(\langle\rho\rangle) = 8/(\log(2\rho_i) - \log(\langle\rho\rangle))$ pour déduire des densités d'atomes dans l'état P à partir des densités de puissance expérimentales de la figure (2.21).

**Sphère de la cellule à 40.4 mbar : évaluation des paramètres**

**Evaluation de** $création_{n_S}$ Dans les simulations, pour avoir une population stationnaire des atomes métastables comparable à celle du tube, il faut un $création_{n_S} \sim 3.2 \times 10^{14}$ at/cm$^3$/s.

On peut ici aussi essayer d'évaluer un temps de vie moyen des atomes métastables qui est leur temps de diffusion vers la paroi. Pour avoir un majorant du temps de diffusion dans cette sphère de 3 cm de rayon, on peut utiliser la formule de [Tastevin, 87] (p. 108) avec un cylindre de rayon $R = 4$ cm et de longueur 6 cm. On trouve pour 40.4 mbar $\tau_{11} = 60$ ms. On trouve alors un rythme de création de ces atomes $n_S/\tau_{11} \sim 5.83 \times 10^{12}$ at/cm$^3$/s. Dans cette géométrie, ce n'est plus la diffusion qui domine comme dans le tube mais bien la conversion des atomes métastables en molécules métastables.

**Effet de la lumière à 1083 nm** Sur le graphe (2.25), on a également reporté les résultats de simulation pour des rapports de $création_N/création_{n_S}$ comparables à ceux obtenus dans le tube. La pression étant la même, on doit avoir le même $n_P/n_S$ (i.e. $fraclas$) pour le terme de création à partir de l'état $2^3$P. Pour la variation relative de $N$ déterminé expérimentalement (1.03, ligne horizontale

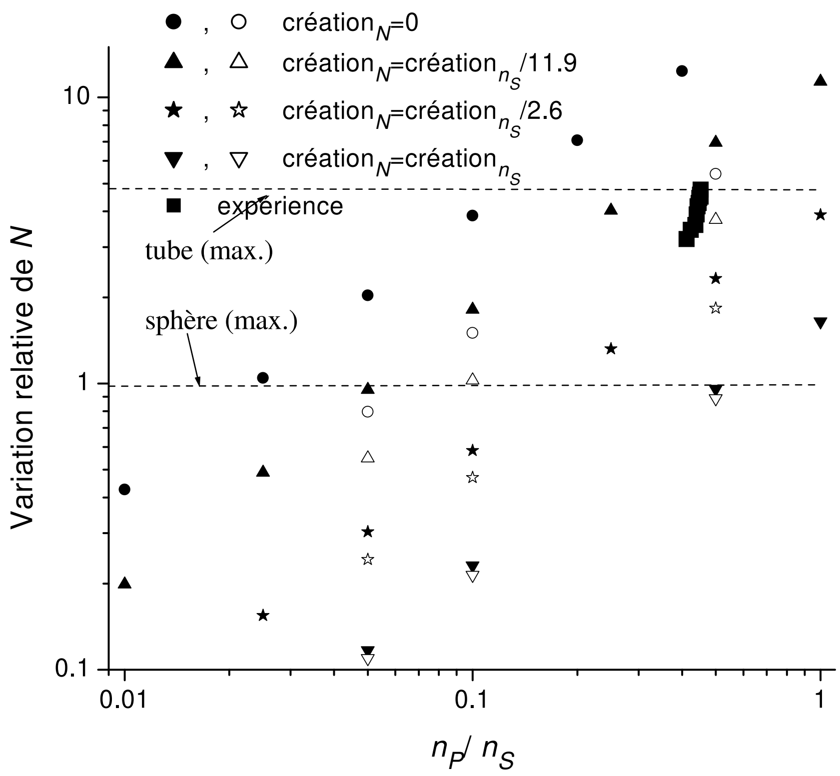


FIG. 2.25 – Comparaison des variations relatives de la population $N$ des molécules métastables avec $n_P/n_S$ pour différents termes source $création_N$ dans le tube (symboles pleins) et dans la sphère (symboles ouverts). On a pris pour $n_S$ la valeur expérimentale 3.5 $10^{11}$ at/cm$^3$. Les deux traits horizontaux correspondent aux variations maximales mesurées.

inférieure sur la figure 2.25), on trouve ici un encadrement pour $création_N$ entre $création_N = création_{n_S}/1.19$ et $création_N = création_{n_S}$, ce qui indique que la densité estimée d'atomes dans cette sphère est inférieure à celle du tube.

### Cellules cylindriques de 8.6 et 32.3 mbar

**Evaluation de $création_{n_S}$** Pour évaluer $création_{n_S}$, n'ayant pas effectué de mesure de $n_S$ dans les expériences de LIF, on a utilisé des résultats d'absorption typique pour des décharges les plus intenses, soit 1.8%/cm pour la cellule à 32.3 mbar et de 1.6%/cm pour la cellule à 8.6 mbar ; ce qui donne des densités typiques d'atomes métastables de $4.3 \times 10^{10}$ at/cm$^3$ et de $3.8 \times 10^{10}$ at/cm$^3$.

Dans les simulations, pour avoir ces densités typiques, il faut un $création_{n_S} = 10^{13}$ at/cm$^3$/s. Dans cette géométrie (cylindre de 5 cm de diamètre et de 5 cm de long), en utilisant [Tastevin, 87] (p.108) on trouve des temps de diffusion de l'ordre de la ms/mbar. On trouve donc des taux de création supérieurs à ceux trouvés : ici encore c'est le processus de conversion atome métastable en molécule métastable qui domine.

**Effet de la lumière à 1083 nm** Dans les deux cas on trouve des variations relatives bornées entre $création_N = 0$ et $création_N = création_{n_S}$ pour les deux pressions (figure 2.26).

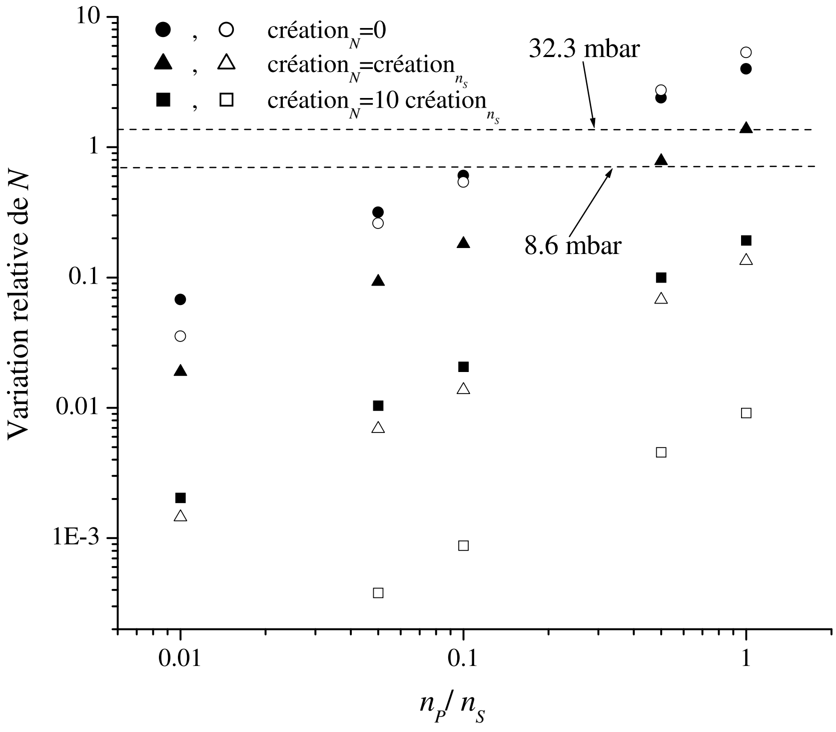


FIG. 2.26 – Comparaison des variations relatives de la population $N$ des molécules métastables avec $n_P/n_S$ pour deux pressions différentes (symboles pleins : 32.3 mbar, $n_S = 4.4\ 10^{10}$ at/cm$^3$, symboles ouverts : 8.6 mbar $n_S = 3.8\ 10^{10}$ at/cm$^3$), avec le même taux de création $création_{n_S} = 10^{13}$ at/cm$^3$/s. Les deux traits horizontaux correspondent aux variations maximales mesurées.

#### Evaluation d'un temps d'échange de métastabilité des molécules

Le temps d'échange de métastabilité est $\tau_{ech} = 2 \times 10^{-7}$ s pour un torr à 300 K pour l'hélium-3 [Dupont-Roc et al, 71], soit ici avec des absorptions de 11 ppm par torr à 300 K : $T_{ech}^{at} = 2 \times 10^{-7}/11 \times 10^{-6} = 20$ ms pour un atome métastable ou encore $T_{ech}^{mol} = T_{ech}^{at} \times n_S/N$ pour une molécule métastable. Dans les simulations, nous avons trouvé un encadrement de la densité des molécules entre $7 \times 10^{10}$ mol/cm$^3$ et $1.75 \times 10^{11}$ mol/cm$^3$, soit pour une densité d'atomes de $3.5 \times 10^{11}$ at/cm$^3$, des temps d'échange compris entre 40 ms $\leq T_{ech}^{mol} \leq$ 100 ms.

Si la relaxation de la polarisation nucléaire vient d'un processus d'échange de métastabilité avec les molécules métastables, on peut écrire un temps d'échange de métastabilité pour ces mêmes molécules $T_{ech}^{mol}$ :

$$T_{ech}^{mol} = T_{ech}^{at} \times \frac{n_S}{N} \times \frac{\sigma_{ech}^{at}}{\sigma_{ech}^{mol}} \tag{2.21}$$

avec $\sigma_{ech}^{at}$ et $\sigma_{ech}^{mol}$, les sections efficaces déchange de métastabilité respectivement pour les atomes métastables et les molécules métastables. Pour cette décharge, on a trouvé des temps de relaxation $(T_{relax})_{déch}$ dans le plasma pour la polarisation nucléaire $M$ de l'ordre de 200 s ; on a donc $T_{ech}^{mol} \simeq (T_{relax})_{déch} \simeq 200$ s. Avec (2.21), on peut alors tirer $\sigma_{ech}^{mol} = \sigma_{ech}^{at} \times (n_S/N) \times \left(T_{ech}^{at}/T_{ech}^{mol}\right)$, soit $\sigma_{ech}^{at}/5000 \leq \sigma_{ech}^{mol} \leq \sigma_{ech}^{at}/2000$.

### 2.2.5 Conclusion et perspectives

Avec les valeurs expérimentales des largeurs des composantes rotationnelles $(\Delta_\lambda)_{FWHM} \sim 0.01$ nm et de densité estimée de $7 \times 10^{10}$ mol/cm$^3$ et $1.75 \times 10^{11}$ mol/cm$^3$ dans le tube de 40.4 mbar, on comprend l'échec des mesures d'absorptions d'une source classique à 465 nm par des molécules métastables avec une sensibilité de $10^{-3}$. Les expériences de LIF de ces molécules nous ont permis d'avoir un outil quantitatif pour mesurer l'effet sur cette population de la lumière incidente à 1083 nm.

La plus grande augmentation de la population des molécules métastables induite par la lumière à 1083 nm a été observée pour les plus fortes pressions (40.4 mbar) : une augmentation jusqu'à un facteur 4.75 de la population des molécules métastables pour la transition $C_2$-$C_5$ et d'un facteur 2.75 pour $C_9$.

Cette augmentation d'un facteur 2.75 pour $C_9$ n'est pas assez importante pour rendre en compte de manière quantitative de l'augmentation d'un facteur 10 du taux de relaxation avec la lumière incidente à 1083 nm dans les conditions de pompage optique à 0.1 T. La différence est peut être due à l'effet du champ magnétique sur les caractéristiques du plasma. Il y a peut-être un effet du champ sur la densité de ces molécules peuplées par cascade radiative ou encore sur les sections efficaces d'échange de métastabilité. Des expériences complémentaires doivent être menées afin de mesurer la variation de population des molécules métastables à 0.1 T et/ou de caractériser la cinétique de pompage optique à bas champ.

On a mis en évidence l'évidence de l'existence de molécules sans doute reliée (pour les fortes pressions) aux limitations du pompage optique. Pour repousser ces limitations, on pourrait envisager d'utiliser une décharge pulsée cyclique qui à chaque impulsion intense égaliserait les populations atomiques et moléculaires grâce aux collisions Penning, et pourrait permettre de maintenir $n_S/N$ plus important.

Il existe peut-être un champ magnétique optimal puisqu'à 0.1 T, on a de meilleurs résultats sur l'efficacité du pompage optique pour les fortes pressions.

Le processus de relaxation de $M$ par les molécules métastables est plus important pour les fortes pressions, mais il peut être aussi limitant pour les polarisations d'équilibre dans les expériences de pompage optique traditionnel à faibles pressions (de l'ordre du mbar). Si tel est le cas, et si on trouve une situation de pompage optique plus favorable, on peut espérer atteindre des polarisations d'équilibre supérieures à 80%, ce qui peut être critique dans la réalisation de cibles polarisées pour la physique nucléaire.

# Conclusion

Le modèle de pompage optique que nous avons confronté en détail à l'expérience permet de rendre compte par bien des aspects du détail de l'interaction des atomes avec la lumière. Même si ce modèle de pompage optique dans l'helium doit encore être raffiné, il permet cependant d'obtenir des résultats utiles à la compréhension des processus du pompage optique avec l'introduction d'un seul paramètre phénoménologique $X_S$. Des mesures préliminaires directes des effets de toutes les redistributions collisionnelles dans l'état métastable permettent d'évaluer l'influence et l'importance relative des collisions élastiques et inélastiques mises en jeu dans le pompage optique indirect de l'hélium-3 et ainsi de préciser des paramètres jusque-là phénoménologiques.

Nous avons montré que les nouvelles technologies de lasers de puissance à fibres sont bien adaptées au pompage optique de l'hélium en terme de puissance disponible et de largeur spectrale, sous réserve de critères dynamiques pour cette largeur spectrale qui résultent des caractéristiques de la redistribution collisionnelle. Ce sont maintenant des outils précieux pour les applications nécessitant un système simple et compact (environnement hospitalier par exemple) pour la production d'importantes quantités de gaz polarisé.

Nous avons montré qu'un champ magnétique judicieux permet de faire du pompage optique pour des pressions plus importantes que le pompage optique traditionnel, notamment en réduisant la relaxation nucléaire par des découplages hyperfins des états excités dans la cascade radiative. L'étude spectroscopique détaillée de l'effet Zeeman de la transition à 1083 nm de l'hélium que nous avons réalisée nous permet d'identifier précisément les positions de ces transitions et leurs intensités, ce qui nous a permis de mettre au point une technique originale de mesure de la polarisation nucléaire en champ quelconque. L'intégration à notre modèle de pompage optique de ces résultats sera une étape importante pour la compréhension détaillée du pompage optique laser en champ fort.

Nous avons démontré que la présence de lumière de pompage optique augmente significativement la population de molécules métastables au sein d'un plasma d'hélium, en particulier à forte pression. Nous pensons que ce mécanisme introduit une importante relaxation qui rend inefficace le pompage optique à forte puissance laser. Il s'agit peut-être là d'un effet limitant les polarisations d'équilibre dans les situations de pompage optique traditionnel à faibles pressions. Si tel est le cas, et si on trouve une situation de pompage optique plus favorable, on peut espérer atteindre des polarisations d'équilibre supérieures à 80%, ce qui peut être important lors de la réalisation de cibles polarisées pour la physique nucléaire, pour lesquelles il est essentiel d'avoir une polarisation presque totale.

# Bibliographie

[Alberts et al, 94] M.Alberts et al, Nature **370** (1994) 1999.

[Aminoff et al, 89] Aminoff C.G., Larat C., Leduc M., Rev. Phys. Appl. **24** (1989) 827.

[Barbé et al, 74] Barbé R., Leduc M. et Laloë F., J. Physique **35** (1974) 699.

[Becker et al, 99] J.Becker et al, Eur.Phys.J **A6** (1999) 329.D.

[Becker et al, 98] J. Becker *et al.*, Nuc. Instr. & Meth. A **402** (1998) 327.

[Bigelow et al, 92] N.P. Bigelow, P.J. Nacher and M. Leduc, J. Phys. II France 2 (1992) 2159-2179.

[Bloch et al, 85] D. Bloch, G. Trenec and M. Leduc, J. Phys. B : At. Mol. Phys.**18** (1985) 1093-1100.

[Bouchiat et al, 60] M.A. Bouchiat, T.R. Carver, C.M. Varnum, Phys. Rev. Lett. **5** (1960) 373.

[Chernikov et al, 97] S.V. Chernikov, J.R. Taylor, N.S. Platonov , V.P. Gasponstev, P.J. Nacher, G. Tastevin, M. Leduc and M.J. Barlow, Electronics Lett. **33** (1997) 787-789.

[Cohen-Tanoudji et al, 69] C. Cohen-Tanoudji, J. Dupont-Roc, S. Haroche and F. Laloë, Phys. Rev. Lett. **22** (1969) 758.

[Cohen et al, 73] C. Cohen-Tanoudji, B. Diu, F. Laloë, Mécanique Quantique I, Hermann (1973).

[Colegrove et al, 60] Colegrove F.D., Schearer L.D., Walters G.K., Phys. Rev. **119** (1960) 680.

[Courtade et al, 00] Courtade E., Marion F., Nacher P.-J., Tastevin G., Dohnalik T. and Kiersnowski K., Hyperfine Interaction **127** (2000) 451-454.

[Daniels et al, 71] J.M. Daniels and R.S. Timsit, Can. J. Phys. **49** (1971) 525.

[Daniels et al, 87] J.M.Daniels et al, JOSAB **4** (1987) 1133.

[Darrasse et al, 97] L. Darrasse, G. Guillot, P.J. Nacher and G. Tastevin, C.R. Acad. Sci. Paris, **324** (1997) 691.

[Deloche et al, 76] R. Deloche, P. Monchicourt, M. Cheret and F. Lambert, Phys. Rev. A **13** (1976), No. 3,1140-1176.

[Dupont-Roc et al, 71] Dupont-Roc J., Leduc M., Laloë F., Phys. Rev. Lett. **27** (1971) 467.

[Elbel et al, 90] M. Elbel, C. Larat, P.J. Nacher and M. Leduc, J. Phys. France **51** (1990) 39.

[Emmert et al, 88] Emmert F., Angermann H.H., Dux R., Langhoff H., J. Phys. D : Appl. Phys. **21** (1988) 664-667.

[Fitzsimmons et al, 68] W.A. Fitzimmons, N.F. Lane and G.K. Walters, Phys. Rev. **174** (1968) 193.

[Hasson, 99] K.C.Hasson, European Radiology **9** (1999) B16.

[Herzberg et al, 50] G. Herzberg, Spectra of Diatomic Molecules, D. Van Nostrand Company, Inc (1950).

[Kastler et al, 66] A. Kastler, C. Cohen-Tanoudji, Progress in Optics 5, (North Holland Publ. 1966).

[Jones et al, 00] G.L. Jones *et al.*, Nuc. Instr. & Meth. A **440** (2000) 772.

[Laloë, 68] F. Laloë, Thèse 3$^{\text{ème}}$ cycle, Paris (1968).

[Leduc et al, 82] M.Leduc et al, Rev.Phys.Appl.**17** (1982) 355.

[Leduc et al, 83] M. Leduc and al., Nuclear Science App. 41486, (1983), Vol 1.

[Leduc et al, 00] Leduc M., Nacher P.-J., Tastevin G. and Courtade E., Hyperfine Interaction **127** (2000) 443-449.

[Lefevre-Seguin, 84] Lefèvre-Seguin V., Thèse d'Etat, Paris (1984).

[Lichten et al, 74] W. Lichten, M V. McCusker and T.L. Vierima, J. Chem. Phys. **61** (1974) 2200.

[Major et al, 93] J.S.Major et al, Electron.Lett. 29 (1993) 2121.

[Myers et al, 77] G. Myers and A.J. Cunningham, J. Chem. Phys. **67** (1977), No. 5, 1942-1947.

[Nacher et al, 85] P.J. Nacher, M.Leduc, J.Physique **46** (1985), 2057-2073 ; N.B. : la formule de l'appendice y est fausse de $\sqrt{2}$.
P.J. Nacher, Thèse d'état, Paris (1985).

[Partridge et al, 66] R.B. Partridge, G. W. Series, Proc. Phys. Soc. **88** (1966) 983.

[Pinard et al, 74] M. Pinard and J.van der Linde, Can.Journ.Phys. **52** (1974) 1615. M. Pinard, Thèse de troisième cycle, Paris (1973).

[Stevefelt et al, 72] J. Stevefelt, Phys. Rev. A  (1972) No. 3,1502-1515.

[Stoltz et al, 96, 1] E. Stoltz, B. Villard, M. Meyerhoff and P.J. Nacher, Appl. Phys. **B63** (1996) 635.

[Stoltz et al, 96, 2] E. Stoltz, M. Meyerhoff, N. Bigelow, M. Leduc, P.J. Nacher and G. Tastevin, Applied Physics **B63** (1996) 629-633.

[Surkau et al, 97] R.Surkau et al, Nucl.Instr.and Meth. **A 384** (1997) 444.

[Tastevin, 87] G. Tastevin, Thèse de doctorat d'état, Paris VI (1987).

[Walker et al,97] T.C. Walker and W. Happer, Rev. Mod. Phys. **69** (1997) 629.

[Wiese et al, 66] Wiese W.L., Smith L.W., Glennon B.M., Atomic transition probabilities, National Standard rteference Data Series NBS **4** (1966).

# Appendice 1 : Expression de l'intensité lumineuse absorbée

On suppose ici une intensité du faisceau lumineux est suffisamment faible pour que le régime d'absorption de la lumière par les atomes d'hélium soit linéaire. L'intensité du faisceau après traversée de la cellule est :

$$I = e^{-NL\lambda(f)}, \tag{2.22}$$

où $N$ est la densité de métastables, $f$ la fréquence du laser, $L$ la longeur parcourue par le faisceau dans le gaz et $\lambda(f)$ un coefficient traduisant le taux d'absorption pour un atome.

D'après [Nacher et al, 85], on a :

$$\lambda(f) = F\frac{\sqrt{\pi}\alpha\hbar}{mD}e^{-(f-f_0)^2/D^2}, \tag{2.23}$$

où $f_0$ est la fréquence de résonance, $m$ la masse de l'électron, $\alpha$ la constante de structure fine, $D$ la largeur Doppler et $F$ la force d'oscillateur de la transition.

Ainsi une mesure de $\lambda(f)$ donne accès à deux paramètres d'une transition : intensité et position.

Pour réduire le bruit sur la mesure, on module la densité de métastables à la fréquence $\omega$ autour d'une valeur moyenne :

$$N(t) = N_0(1 + \epsilon \sin \omega t). \tag{2.24}$$

On a pu constater que $\epsilon$ vaut typiquement 0.1 et vaut au maximum 0.20 pour l'intensité de décharge choisie. Plaçons-nous à une fréquence $f$ donnée, et posons $\beta = \lambda(f)LN_0$. On dispose de deux signaux :

$$I(\beta) = I_0 \times e^{-\beta}\langle e^{-\beta\epsilon \sin \omega t}\rangle, \tag{2.25}$$

qui est la moyenne sur une période du signal fourni par la photodiode et

$$S(\beta) = I_0 \times e^{-\beta}\langle \sin \omega t\; e^{-\beta\epsilon \sin \omega t}\rangle, \tag{2.26}$$

signal fourni par l'ADS qui est la composante de l'intensité du faisceau en phase avec la modulation de la décharge.

Un calcul donne :

$$S(\beta) = -I_0 : e^{-\beta} \sum_{k=0}^{+\infty} \left(\frac{\beta\epsilon}{2}\right)^{2k+1} \frac{1}{k! : (k+1)!} \tag{2.27}$$

$$I(\beta) = I_0 : e^{-\beta} \sum_{k=0}^{+\infty} \left(\frac{\beta\epsilon}{2}\right)^{2k} \frac{1}{k! : k!} \tag{2.28}$$

Ainsi :

$$\left|\frac{S(\beta)}{I(\beta)}\right| \approx \frac{\beta\epsilon}{2} - \frac{(\beta\epsilon)^3}{16} \tag{2.29}$$

Le quotient du signal de l'ADS par le signal de la photodiode est donc proportionnel à $\beta$ avec une erreur inférieure à 1%, même dans les cas les plus défavorables (absorption de 80% et $\epsilon = 0.20$). On peut remarquer de plus que cette quantité est indépendante de l'intensité du laser. C'est la quantité que nous avons retenue pour mesurer les positions des raies et leurs forces d'oscillateurs respectives.

# Appendice 2 : Spectre rotationnel de molécules diatomiques

Nous prendrons comme notation celle utilisée dans [Herzberg et al, 50]. Nous allons considérer la rotation de deux noyaux autour de leur centre de masse. L'hamiltonien $H$ de ce système s'écrit dans le repère de centre de masse (par exemple [Cohen et al, 73]) :

$$H = \frac{1}{2\mu R^2} P^2$$

où $\mu$ est la masse réduite du système, $R$ la distance internucléaire et $P$ le moment cinétique orbital total. Dans une molécule diatomique le moment angulaire suivant z est nul. Les fonctions d'onde de rotation sont les harmoniques sphériques $Y_J^M(\theta, \varphi)$ et les énergies de rotation $E_J$ sont :

$$E_J = \frac{\hbar^2}{2\mu R^2} J(J+1) = hc[BJ(J+1)]$$

où $B = \frac{\hbar^2}{2\mu R^2}$ est appelée constante rotationnelle et est souvent exprimée en $\mathrm{cm}^{-1}$.

**Cas du rotateur rigide** On considére ici que $B = B_e = \frac{\hbar^2}{2\mu R_e^2}$ = constante (la distance entre les deux noyaux est fixe) : cette situation n'est pas réaliste mais elle permet d'identifier et d'assigner rapidement les raies expérimentales.

En notant par X" ce qui se rapporte à l'état fondamental (ici le niveau $2^3\Sigma_u^+$) et par X' ce qui se rapporte à l'état excité ($3^3\Pi_g$), on aura des transitions avec des écarts d'énergie suivants :

<u>Raie R</u> : $\Delta J = +1 = J' - J''$
$E_{J'} - E_{J''} = (B' - B'')J^2 + (3B' - B'')J + (2B' - B'')$
distance entre deux raies R : $\Delta R = (2J+1)(B' - B'') + (3B' - B'')$

<u>Raie P</u> : $\Delta J = -1 = J' - J''$

$E_{J'} - E_{J''} = (B' - B'')J^2 - (B' + B'')J$
distance entre deux raies P : $\Delta P = (2J+1)(B' - B'') - (B' + B'')$

Raie Q : $\Delta J = 0 = J' - J''$
$E_{J'} - E_{J''} = J(J+1)(B' - B'')$
distance entre deux raies Q : $\Delta Q = 2J(J+1)(B' - B'')$

**Cas du rotateur non rigide : la distorsion centrifuge** Une molécule n'est évidemment pas strictement un rotateur rigide. Classiquement, lorsque la molécule tourne, les atomes subissent une force centrifuge qui tend à augmenter la distance internucléaire. On considère maintenant que la distance entre les deux molécules n'est plus constante et que ces dernières sont reliées par un ressort. Dans l'énergie de rotation apparaît alors un terme de distorsion centrifuge $D = 4B^3/\omega^2$ (relation de Kratzer [Herzberg et al, 50]) où $B$ est la constante rotationnelle et $\omega$ la fréquence de vibration de la molécule.

On a alors $E(J)$ qui s'écrit sous la forme :

$$E(J) = hc[BJ(J+1) - DJ^2(J+1)^2]$$

**Cas de l'oscillateur non rigide** Pour traiter correctement ce problème, il faut aussi tenir compte du fait que la vibration et la rotation ne peuvent être traitées de manière séparée, ce qui revient à dire que $B$ et $D$ dépendent du niveau vibrationnel $v$ dans lequel on se trouve : $(B_e = \frac{\hbar^2}{2\mu R_e^2} \longrightarrow B_v = \frac{\hbar^2}{2\mu} \left\langle \frac{1}{R^2} \right\rangle_v)$

$$B = B_v = B_e - \alpha_e(v + \frac{1}{2}) + ...$$
$$D = D_v = D_e - \beta_e(v + \frac{1}{2}) + ...$$

où $\alpha_e$ et $\beta_e$ sont issus d'un développement perturbatif de $\left\langle \frac{1}{R^2} \right\rangle_v$ où on tient compte de l'hanarmoniticité du potentiel.

Et $E(J)$ devient alors :

$$E(J) = hc[B_v J(J+1) - D_v J^2(J+1)^2]$$

L'énergie de vibration de l'oscillateur étant donné ici par :

$$E_v = hc\omega_e(v + \frac{1}{2}) - hc\omega_e x_e(v + \frac{1}{2})^2 + ...$$

où $\omega_e = \sqrt{\frac{k}{\mu}}$ est la pulsation d'équilibre de l'oscillateur harmonique, avec $k$ la force constante, et où le deuxième terme de $E_v$ donne la correction anharmonique de ce même oscillateur au premier ordre.

Remarque 1 : cas des molécules homonucléaires ayant un spin nucléaire

**Cas des Fermions** $I = \frac{1}{2}$ Pour deux particules 1 et 2, le principe de symétrisation de Pauli pour les fermions donne : $\varphi(1,2) = -\varphi(2,1)$

La fonction d'onde totale du système $\Psi_{total} = Y_J^M(\theta,\varphi)\,\varphi(i_1,i_2)$ doit elle aussi être antisymétrique avec $Y_J^M(\theta,\varphi) = (-1)^J Y_J^M(\theta,\varphi)$ en permutant 1 et 2.

Si $J$ est pair $\Rightarrow \varphi(i_1,i_2)$ antisymétrique et $\varphi(i_1,i_2) = |F=0, M_F=0\rangle$
$J$ est impair $\Rightarrow \varphi(i_1,i_2)$ symétrique et $\varphi(i_1,i_2) = |F=1, M_F=0,\pm1\rangle$
La dégénerescence des $J$ pairs est trois fois plus faible que celle des $J$ impairs

**Cas des bosons** $I = 0$ Dans ce cas la fonction d'onde totale est paire si $i_1 = i_2 = 0$ et les états $J = 2j+1$ n'existent pas.

Remarque 2 :

Pour des molécules isotopiques (molécules ne différant que par la masse d'un ou des deux noyaux mais pas par leur nombre atomique), et en notant $\rho = \sqrt{\frac{\mu}{\mu^i}}$ avec $\mu^i$ le rapport des masses de l'isotope le plus léger et par $\mu$ celui de l'autre isotope, on trouve les corrections suivantes :

pour l'énergie de vibration : $(\omega_e)^i = \rho(\omega_e)$ et $(\omega_e x_e)^i = \rho^2(\omega_e x_e)$
pour la constante rotationelle : $(B_e)^i = \rho^2(B_e)$
pour la constante centrifuge : $(D_e)^i = \rho^4(D_e)$
pour les corrections liées à la vibration : $(\alpha_e)^i = \rho^3(\alpha_e)$ et $(\beta_e)^i = \rho^5(\beta_e)$

Expérimentalement, on a regardé une cellule avec un mélange $^3$He(6 torr)/$^4$He(18 torr) où on s'attend à avoir trois sortes de molécules $^3He_2$, $^4He_2$ et $^3$He-$^4$He dans les proportions suivantes 1/4, 9/4 et 6/4 respectivement. Dans la littérature, ne disposant que des constantes rotationnelles que pour $^4He_2$ (par ex [Herzberg et al, 50]), pour trouver les constantes rotationnelles pour l'$^3He_2$ et $^3$He-$^4$He on a appliqué les corrections isotopiques suivantes $\rho = \sqrt{\frac{4}{3}}$ et $\rho = \sqrt{\frac{7}{6}}$ respectivement.

# Appendice 3 : Article à paraître dans European Physical Journal D

## “Magnetic Field Effects on the 1083 nm Atomic Line of Helium”

**Optical Pumping of Helium and Optical Polarisation Measurement in High Magnetic Field**

E. Courtade, F. Marion, P.-J. Nacher, G. Tastevin,
K. Kiersnowski and T. Dohnalik

http ://arXiv.org/abs/physics/0203040

# Résumé

Un inconvénient important du pompage optique indirect de l'hélium-3 traditionnel est qu'il opère à des pressions faibles qui ne sont en particulier pas favorables aux applications médicales d'IRM nécessitant la production d'hélium-3 gazeux très polarisé et dense : une voie prometteuse est d'utiliser un fort champ magnétique qui permet d'opérer plus efficacement à plus forte pression.

Dans une première partie nous faisons apparaître l'importance des corrélations entre vitesse et orientation nucléaire pour les atomes excités présents dans le plasma et soumis à la lumière de pompage optique à 1083 nm. Nous avons étudié leur effet sur l'efficacité du pompage optique tant au moyen d'un modèle détaillé que par des mesures expérimentales systématiques. Nous montrons la grande importance des caractéristiques spectrales fines des lasers à 1083 nm.

Dans la deuxième partie, nous nous intéressons plus spécifiquement à des conditions non standard de pompage optique, en présence d'un fort champ magnétique et à forte pression. Nous avons réalisé une étude spectroscopique détaillée de l'effet Zeeman de la transition à 1083 nm de l'hélium qui permet d'identifier précisément les positions de ces transitions et leurs intensités, ce qui nous a permis de mettre au point une technique originale de mesure optique de la polarisation nucléaire en champ quelconque. Nous avons démontré que la présence de lumière à 1083 nm augmente significativement la population de molécules métastables au sein d'un plasma d'hélium, en particulier à forte pression.

# Abstract

Metastability exchange optical pumping of helium-3 usually operates at low pressures. This is not well suited for the production of a highly polarised and dense gas of helium-3 required in particular for lung MRI applications. We show that an improvement results from performing the optical pumping at higher pressures in the presence of a sufficiently high magnetic field.

We first point out the importance of correlations between atomic velocity and nuclear orientation for excited atoms in the plasma which are coupled to the 1083 nm optical pumping light. We have studied the effect of these correlations on optical pumping efficiency through systematic experimental measurements in conjunction with a detailed model.

We then focus on non standard conditions for optical pumping in high magnetic field and high pressure. Here we performed a detailed spectroscopic study of Zeeman effects on the 1083 nm transition of hélium. It gave a precise identification of positions and intensities of all transitions, and in turn allowed us to we develop a new optical measurement method of nuclear polarisation in arbitrary field. We have demonstrated that the presence of intense 1083 nm light significantly increases the population of helium metastable molecules in the plasma, in particular at high pressure.