



HAL
open science

pompage optique de l'hélium-3 a forte pression dans un champ magnetique de 1.5 Tesla

Marie Abboud

► **To cite this version:**

Marie Abboud. pompage optique de l'hélium-3 a forte pression dans un champ magnetique de 1.5 Tesla. Physique Atomique [physics.atom-ph]. Université Pierre et Marie Curie - Paris VI, 2005. Français. NNT: . tel-00011099

HAL Id: tel-00011099

<https://theses.hal.science/tel-00011099>

Submitted on 22 Nov 2005

HAL is a multi-disciplinary open access archive for the deposit and dissemination of scientific research documents, whether they are published or not. The documents may come from teaching and research institutions in France or abroad, or from public or private research centers.

L'archive ouverte pluridisciplinaire **HAL**, est destinée au dépôt et à la diffusion de documents scientifiques de niveau recherche, publiés ou non, émanant des établissements d'enseignement et de recherche français ou étrangers, des laboratoires publics ou privés.

DÉPARTEMENT DE PHYSIQUE DE
L'ÉCOLE NORMALE SUPÉRIEURE
LABORATOIRE KASTLER BROSEL



THÈSE DE DOCTORAT DE L'UNIVERSITÉ PARIS VI
spécialité : Physique Atomique

présentée par
Marie ABOUD

pour obtenir le grade de
Docteur de l'Université Paris VI

Sujet de la thèse :

POMPAGE OPTIQUE DE L'HÉLIUM-3 À FORTE PRESSION
DANS UN CHAMP MAGNÉTIQUE DE 1.5 TESLA

Soutenue le 12 juillet 2005 devant le jury composé de :

M.	W. HEIL	Rapporteur
M.	J. VIGUÉ	Rapporteur
M.	P.-J. NACHER	Directeur de thèse
Mme.	A. SINATRA	Membre invité
M.	Ph. JACQUIER	Examineur
M.	E. COURTADE	Examineur
M.	W. FARAH	Examineur
M.	T. DOHNALIK	Examineur

à mes parents

Remerciements

Mon travail de thèse s'est déroulé de Septembre 2002 à Juillet 2005 au Laboratoire Kastler Brossel au sein du Département de Physique de l'École Normale Supérieure.

Je désire remercier le directeur du laboratoire Franck Laloë pour m'y avoir accueillie. J'ai pu y jouir de conditions de travail privilégiées et d'un environnement exceptionnel sur plusieurs plans.

Je remercie le jury de la thèse et spécialement les rapporteurs M. Werner Heil et M. Jacques Vigué pour leur lecture attentive du manuscrit. Je tiens également à remercier M. Philippe Jacquier, M. Wehbeh Farah, M. Tomasz Dohnalik et M. Emmanuel Courtade pour avoir accepté de faire partie de mon jury. Un merci tout particulier à ceux d'entre eux qui ont dû spécialement voyager jusqu'à Paris pour assister à ma soutenance.

Je tiens à témoigner ma reconnaissance à Pierre-Jean Nacher et Alice Sinatra pour m'avoir aidée et formée à la recherche sans jamais me juger.

Je remercie vivement Pierre-Jean, mon directeur de thèse, à plus d'un titre : pour m'avoir donné la possibilité, stagiaire de DEA puis thésarde, de travailler dans son groupe et pour tout ce que j'ai appris à son contact durant ces trois années. Son immense culture de la physique expérimentale et sa disponibilité dès qu'il était question d'avoir recours à ses "doigts magiques" ont été très précieuses.

Je remercie du fond du cœur Alice Sinatra, ma "chef officieuse". Lors de notre première rencontre, j'ai beaucoup apprécié sa gentillesse et son enthousiasme. Cette impression ne s'est jamais démentie, jour après jour. Merci Alice pour le plaisir que j'ai eu à travailler quotidiennement avec toi, pour tout ce que j'ai appris à tes côtés et pour mon initiation à la langue italienne.

Je remercie aussi Geneviève Tastevin pour sa disponibilité et son aide.

Merci également aux autres membres permanents, thésards, post-docs, visiteurs et stagiaires du groupe des Fluides Quantiques que j'ai côtoyés pendant mon séjour au laboratoire : Jacques Dupont-Roc, Marion Batz (à qui je souhaite un bon courage pour la suite de sa thèse), Katarzyna Suchanek, Gaël Reinaudi, Jamal

Choukeife, Jean-Noel Fuchs, Dimitri Gangardt, Christopher Bidinosti, François Marion, Nathalie Piegay, Pascale Diener, Fabien Mahaut et Manon Pellissier.

Merci aux membres des équipes de Michèle Leduc (Jérémy Léonard, Steven Moal et Jae-Wan Kim) et de Valérie Lefèvre-Seguin (Jean Hare, Sébastien Steiner et Fedja Orucevic) à qui nous avons emprunté mille choses, que nous avons souvent gardées trop longtemps.

Je remercie Jacques Bittoun, directeur de l'U2R2M et du CIERM, pour avoir mis à notre disposition l'imageur clinique installé à l'hôpital du Kremlin Bicêtre.

Merci à Xavier Maître toujours présent pour nos expériences de "pompage optique en fort champ" en week-ends et en nocturnes.

Merci aussi aux autres membres de l'U2R2M : Ludovic de Rochefort, Luc Darasse, Geneviève Guillot, Emmanuel Durand, Josette Prud'homme et Dominique Glutron pour leur aide.

Merci à mes amis et collègues polonais à Cracovie : Tomasz Dohnalik, Zbigniew Olejniczak, Tadeusz Palasz, Anna Nikiel, Kasia Suchanek et Mateusz Suchanek pour les agréables et fructueux séjours que j'ai passés à Cracovie. Dziekuje!!

Je suis reconnaissante envers les services administratifs et techniques du laboratoire et du département de Physique. Merci en particulier à Linda Krikorian, Thierry Tardieu, Nicole Neveu, Dominique Giafferi et José Romer pour le secrétariat, à Monique Brouat à la bibliothèque du département, à Yvon Cabirou et Benoît Lemaire de l'atelier mécanique du LKB, à Lionel Pérennes et Patrick Giron pour le service électronique, à Jean-Francois Point et Didier Courtiade des services généraux, à Roland Labbé du service de menuiserie, à Jack Olejnik de l'atelier mécanique général pour l'impression de posters *express*, à Robert Dalais et les électriciens du service électrique, à Patricia Celton et Denis Jaggi du magasin électronique, à Bruno Fabre du magasin de matières premières, à Zaire Dissi, Xavier Monin, Francis Hulin-Hubard, Alain Launay, Daniel Lemoal et Rémi Portier du service informatique.

Je n'oublie pas de remercier tous mes amis du labo avec qui j'ai partagé d'innombrables pauses autour d'un café ou d'un gâteau : Iacopo Carusotto, Sébastien Steiner, Aurélien Crut, Isabelle Bonnet, Mathieu Melich, Félix Werner et j'en oublie.

Je voudrais remercier tous ceux qui font que ma vie ne se réduit pas à la physique : mes copains de Jaj, de Jounieh, de l'Université Saint Joseph, de Paris, et d'ailleurs : Valérie, Nathalie, Marie, Carine, Faten, Elie, Dominique, Nadine, Jean-Pierre, Antoine et j'en oublie. Je les remercie pour leur soutien et pour

l'intérêt (j'avoue souvent incompréhensible) qu'ils portent à la physique atomique.

Je pense finalement à mes parents et je tiens à les remercier pour m'avoir donné le goût des études, et m'avoir toujours soutenue dans mes choix.

Je remercie Mirna et Hyam pour la joie qu'elles ont portée dans la quasi-totalité de mes soirées, pour leur soutien et encouragement quotidiens, Ibtissam pour la relecture de mon manuscrit et la "pêche" efficace des fautes d'orthographe, Carine et Abdo pour leur bonne humeur continue au téléphone.

Je voudrais remercier plus largement l'ensemble de ma famille et tous ceux qui malheureusement n'ont pas pu assister à ma soutenance.

Merci à tous pour cette richesse humaine et culturelle et cette aventure scientifique que j'ai vécue grâce à vous.

Table des matières

Introduction	13
1 Rappels sur les techniques de polarisation de l'hélium-3	17
1.1 Notions de polarisation	17
1.2 Rappels sur le pompage optique par échange de spin	18
1.3 Rappels sur le pompage optique par échange de métastabilité	19
1.3.1 Pompage optique en conditions standard	19
1.3.2 Dépendance des résultats vis à vis de la pression	22
1.3.3 Dépendance des résultats vis à vis du champ magnétique	24
2 Modélisations du pompage optique à 1.5 Tesla	27
2.1 Structure atomique de l'hélium-3 et nature des transitions	28
2.1.1 Structure atomique des niveaux de l'hélium-3	28
2.1.2 Transitions atomiques à 1.5 Tesla	31
2.1.3 Caractéristiques des raies de pompage à 1.5 Tesla	34
2.2 Processus pris en compte pour la modélisation	41
2.2.1 Couplage au champ électromagnétique	42
2.2.2 Collisions d'échange de métastabilité	45
2.2.3 Processus de relaxation	49
2.3 Modèle à 6 populations	53
2.4 Modèle à 7 populations	55
2.4.1 Limite des fortes pressions	56
2.4.2 Limites analytiques aux fortes puissances laser	60
2.4.3 Discussion des erreurs du modèle à 6 populations	64
2.5 Extensions réalistes des modèles	66
2.5.1 Modèle à 24 populations	66
2.5.2 Effets de la distribution de la puissance laser	69
3 Montage expérimental	71
3.1 Source du champ magnétique	71
3.2 Cellule et décharge radiofréquence	73
3.2.1 Cellules scellées d'hélium-3	73
3.2.2 Décharge radiofréquence et électrodes	75

3.3	Montage optique : principe et réalisation pratique	76
3.4	Les lasers sonde et pompe	79
3.4.1	Le laser sonde	79
3.4.2	Le laser pompe : diode laser amplifiée	80
3.5	Système de mesure et acquisition	82
4	Méthode de mesure	85
4.1	Mesure de la polarisation par absorption d'un faisceau sonde	86
4.1.1	Principe de la mesure	86
4.1.2	Méthode d'analyse	89
4.2	Mesures expérimentales à l'état stationnaire	90
4.2.1	En absence du laser pompe	91
4.2.2	En présence du laser pompe	93
4.3	Mesures expérimentales dynamiques	95
4.3.1	Mesure de la population d'un sous-niveau métastable	95
4.3.2	Mesure de deux populations métastables	97
5	Résultats expérimentaux du pompage optique à 1.5 Tesla	107
5.1	Effets de la raie atomique à 1.5 Tesla	108
5.1.1	Choix des raies pompe et sonde	108
5.1.2	Résultats du pompage optique	110
5.2	Effets de la décharge à 1.5 Tesla	112
5.2.1	Caractérisation de la décharge	112
5.2.2	Géométrie des électrodes excitatrices	113
5.2.3	Résultats du pompage optique	116
5.2.4	Géométrie de la cellule de pompage optique	120
5.3	Effets de la puissance du laser pompe	122
5.4	Résultats aux pressions élevées	124
5.4.1	Résultats marquants de polarisation	124
5.4.2	Intérêts pour les applications médicales	127
6	Interprétation des résultats expérimentaux	131
6.1	Détermination de la densité de métastables	132
6.1.1	Approche supposant une densité de métastables constante	132
6.1.2	Approche déterminant la densité de métastables à partir des mesures d'absorption	133
6.1.3	Dépendance de la densité de métastables vis à vis de l'orien- tation électronique du niveau métastable	137
6.1.4	Effets de diffusion aux faibles pressions	142
6.2	Analyse des résultats à $M = 0$	145
6.2.1	Taux de pompage $dM/dt_{(M=0)}$	145
6.2.2	Rendement quantique à $M = 0$	146
6.2.3	Effets du désaccord lors d'un pompage multi-transitions	147

6.3	Analyse des résultats à l'état stationnaire	150
6.3.1	Calculs des polarisations stationnaires	150
6.3.2	Évaluation de la relaxation pendant le pompage	151
6.3.3	Interprétations de la relaxation pendant le pompage	154
6.3.4	Effets du champ magnétique sur la relaxation	161
7	Expériences complémentaires	165
7.1	Expériences en faible champ magnétique	165
7.1.1	Montage expérimental	166
7.1.2	Résultats expérimentaux	167
7.2	Expériences sur l'axe de l'imageur clinique	169
7.2.1	Considérations expérimentales	169
7.2.2	Résultats préliminaires en fonction du champ	169
7.3	Expériences jusqu'à 2 Tesla	175
7.3.1	Montage expérimental	175
7.3.2	Premiers résultats	177
	Conclusion	179
A	High nuclear polarization of ^3He at low and high pressure by metastability exchange optical pumping at 1.5 Tesla	181
B	Metastability exchange optical pumping of helium-3 at high pressures and at 1.5 Tesla :	
	Comparison of two optical pumping transitions	191
	Bibliographie	199

Introduction

L'hélium-3 polarisé nucléairement trouve des applications dans divers domaines. En physique nucléaire, il permet de réaliser des cibles polarisées pour les études de la structure du neutron [Mey94], [Bec99] et des polariseurs large bande pour les faisceaux de neutrons (filtres à neutrons) [Sur97], [Bec98]. Depuis quelques années, les gaz rares polarisés tels que le xénon-129 [Alb94] ou l'hélium-3 [Ebe96], [Mol02] sont utilisés en imagerie médicale. Les recherches en imagerie des voies respiratoires par IRM d'hélium polarisé pourraient aboutir à des applications pour des examens cliniques, par exemple pour un diagnostic précoce des pathologies et pour un bilan fonctionnel des poumons suite à des obstructions chroniques, à l'emphysème ou à l'asthme [Bee04].

Toutes ces applications requièrent l'utilisation d'échantillons d'hélium-3 fortement polarisés et relativement denses à la température ambiante (pouvant aller jusqu'à plusieurs bars).

La méthode la plus simple, au moins conceptuellement, pour produire de l'hélium-3 polarisé dense consiste à refroidir les atomes dans un champ magnétique élevé. Appliqué à l'hélium-3 gazeux, cette méthode ne permet pas malheureusement d'obtenir des polarisations nucléaires stationnaires importantes : à une température de l'ordre du Kelvin et dans un champ magnétique de quelques Tesla, des polarisations de l'ordre de 0.01 sont obtenues. De fortes polarisations (0.9-0.95) sont obtenues à l'état solide de l'hélium-3 dans un champ magnétique de 15 Tesla et à une température de 5 mK [Fro98], [Aki00]. Le solide ainsi polarisé peut être ensuite liquéfié sans perte de polarisation [Cas79]. La décompression du solide suivie d'une évaporation du liquide et d'une extraction du gaz a été proposée pour obtenir des échantillons gazeux d'hélium-3 polarisé, mais la faisabilité de cette technique n'a jamais été démontrée.

Pour obtenir des polarisations nucléaires importantes dans l'hélium-3 gazeux, il existe deux autres méthodes. Ces deux méthodes, développées depuis les années

60, font appel au pompage optique [Kas66], [Coh98]; il s'agit du pompage optique par "échange de spin" avec des atomes alcalins [Bou60], [Wal97] et du pompage optique par échange de métastabilité [Sch63], [Col63], [Nac85b].

Le pompage optique par "échange de spin" de l'hélium-3 fournit des échantillons denses (à des pressions de plusieurs bars) avec des polarisations de l'ordre de 0.25-0.35. Toutefois, un inconvénient majeur de cette méthode est la lenteur du processus puisque la polarisation se construit au bout de plusieurs heures voire plusieurs dizaines d'heures [Wal97].

Le pompage optique par échange de métastabilité de l'hélium-3 permet quant à lui d'obtenir des polarisations nucléaires proches de l'unité mais pour une faible pression d'hélium de l'ordre de 1 mbar [Big92], [Gen93], [Bat05]. Des développements divers au niveau de lasers dédiés au pompage [Gen03] ou au niveau de l'amélioration des conditions expérimentales de pompage [Gen93], [Can94], [Sto96a], [Wol04] ont été effectués au long des années. Toutefois, les raisons précises des limitations de l'efficacité du pompage optique par échange de métastabilité aux pressions élevées n'ont jamais été élucidées. Pour remédier à cet inconvénient du pompage par échange de métastabilité, différentes méthodes de compression du gaz polarisé, sans perte notable de polarisation, ont été développées [Eck92], [Nac99], [Gen01]. Cependant, elles nécessitent des appareillages délicats et des opérateurs qualifiés. Il est donc utile pour la diffusion à grande échelle de la nouvelle technique d'imagerie d'optimiser le protocole de la polarisation et de la compression du gaz. Une voie possible est de trouver des conditions où le gaz peut être polarisé à plus forte pression, ce qui réduirait le facteur de compression nécessaire et par la suite simplifierait l'étape de la compression.

Une première série d'expériences de pompage optique par échange de métastabilité en champ magnétique élevé (0.1 Tesla) a permis de polariser le gaz à plus forte pression [Cou01] : les polarisations obtenues à 32 mbar sont augmentées de près d'un facteur 2 par rapport à celles obtenues en champ magnétique habituel de l'ordre du mTesla [Nac02]. Le découplage hyperfin des divers états atomiques et/ou moléculaires dans les états excités de l'hélium-3 pourrait être responsable de cette amélioration par une réduction de la perte d'orientation nucléaire dans ces états excités. Ceci n'est pas établi et motive l'étude de l'efficacité du pompage optique par échange de métastabilité en champ magnétique intense et de la variation de cette efficacité avec l'intensité du champ magnétique.

Dans ce mémoire, nous décrivons un ensemble de travaux expérimentaux et théoriques sur le pompage optique de l'hélium-3 par échange de métastabilité dans un champ magnétique encore plus intense (1.5 Tesla) et à forte pression. Notre manuscrit est organisé de la manière suivante.

Dans le premier chapitre, nous présentons un rappel sur les techniques de polarisation de l'hélium-3 gazeux par pompage optique.

Dans le deuxième chapitre, nous procédons à une modélisation du pompage optique par échange de métastabilité à 1.5 Tesla et aux fortes pressions en nous inspirant des modèles numériques déjà établis et en les adaptant à nos conditions. Nous commençons par détailler la structure atomique des différents niveaux de l'hélium-3 à 1.5 Tesla. Puis, nous décrivons les processus physiques intervenant dans le mécanisme du pompage optique par échange de métastabilité. Finalement, nous proposons des modèles numériques qui permettent de décrire de façon aussi réaliste que possible les effets conjugués des différents processus entrant en jeu au sein d'un gaz d'hélium-3 soumis à un pompage optique à 1.5 Tesla.

Nous consacrons le troisième chapitre à la description du montage expérimental. Après une brève description de l'imageur clinique au sein duquel les expériences ont été effectuées, nous détaillons le montage expérimental sous tous ses aspects : principe du montage optique, sa réalisation pratique soumise à l'exigence d'être complètement amagnétique, les cellules utilisées, les lasers et le système de mesure.

Dans le quatrième chapitre, nous discutons la méthode de mesure de la polarisation par absorption d'un faisceau laser. Nous détaillons les méthodes adoptées pour analyser les mesures effectuées à l'état stationnaire et en dynamique de pompage et nous discutons leur pertinence.

Le cinquième chapitre est dévolu à la présentation d'un corpus de résultats d'expériences de pompage optique réalisées à 1.5 Tesla. Ces résultats illustrent la dépendance des performances du pompage vis à vis de plusieurs paramètres expérimentaux. Nous en déduisons les conditions expérimentales favorables au pompage optique en termes de polarisation stationnaire atteinte et de temps de construction de la polarisation. De plus, nous présentons des résultats marquants du pompage optique à pression élevée. Nous discutons leur importance et leurs intérêts pratiques pour les applications d'imagerie médicale.

Le sixième chapitre comporte une confrontation des résultats expérimentaux aux prédictions théoriques.

Le modèle numérique ne suffit pas à lui tout seul pour prédire l'évolution de la polarisation. Nous commençons par déterminer la densité d'atomes métastables, paramètre crucial dans le calcul de la dynamique de construction de la polarisation nucléaire. Ainsi, nous mettons en évidence une dépendance de la densité d'atomes métastables vis à vis de la polarisation électronique des atomes métastables. Ensuite, nous nous plaçons dans des situations où les processus de relaxation n'affectent pas l'évolution de la polarisation. Nous en déduisons une caractéristique

intrinsèque du pompage, à savoir le rendement quantique des schémas de pompage optique.

Finalement, nous procédons à la mise en évidence de processus de relaxation dépendant de la lumière laser de pompage, affectant la polarisation nucléaire et contribuant à limiter les polarisations stationnaires obtenues aux pressions élevées.

Le septième chapitre présente un ensemble d'expériences complémentaires. Nous commençons par décrire des mesures de pompage optique effectuées dans un champ magnétique de l'ordre du mTesla. Les résultats obtenus sont utilisés pour comparer les performances du pompage optique en faible champ magnétique et à 1.5 Tesla en fonction de la pression. Ensuite, nous présentons des résultats préliminaires de pompage optique dans des champs magnétiques allant de 1.3 Tesla à 0.4 Tesla en utilisant le champ de fuite de l'imageur clinique. Finalement, nous décrivons la mise en place d'un nouveau montage qui sert à des expériences de pompage optique dans un champ magnétique homogène et réglable sur une plage de 0 à 2 Tesla. Nous présentons les principales améliorations de ce dispositif par rapport à celui utilisé pour notre étude à 1.5 Tesla.

Chapitre 1

Rappels sur les techniques de polarisation de l'hélium-3

Dans ce chapitre, après un rappel de quelques notions sur la polarisation nucléaire, nous présentons brièvement les deux techniques habituellement utilisées pour polariser les atomes d'hélium-3 par pompage optique. Nous décrivons leur principe et l'état de l'art actuel.

1.1 Notions de polarisation

L'hélium-3 polarisé hors équilibre de Boltzmann est utilisé dans divers domaines de la physique [Bec98]. En physique nucléaire, il permet de réaliser des cibles polarisées et des polariseurs large bande pour les faisceaux de neutrons [Mey94], [Sur97]. Aux interfaces entre la physique et la médecine, l'hélium-3 hyperpolarisé est utilisé comme une sonde pour explorer l'anatomie et la fonction des espaces aériens pulmonaires [Mol02], [Bee04]. L'hélium-3 hyperpolarisé est également utilisé dans des études de matériaux poreux tels que les aérogels [Gui01]. Plus récemment, des études théoriques suggèrent la réalisation d'une mémoire quantique à l'aide de spins nucléaires de l'hélium-3 polarisé dans son état fondamental [Dan05].

Le niveau fondamental 1^1S_0 de l'hélium-3 est un état singulet ($S = 0$) avec un moment angulaire orbital $L = 0$; son moment angulaire électronique total est $J = 0$. Le moment angulaire total de l'état est donc purement nucléaire $F = I = 1/2$. Le niveau fondamental comporte deux sous-niveaux de nombre quantique $m_I = \pm 1/2$, de population relative $(1 \pm M)/2$, où M est la polarisation nucléaire du niveau fondamental.

La polarisation nucléaire M d'un système de spin nucléaire $I = 1/2$ s'écrit :

$$M = \frac{N_{\uparrow} - N_{\downarrow}}{N_{\uparrow} + N_{\downarrow}} \quad (1.1)$$

où N_{\uparrow} est la population des atomes de $m_I = 1/2$ et N_{\downarrow} est la population des atomes de $m_I = -1/2$.

À 300 K et dans un champ magnétique B , les atomes présentent à l'équilibre thermodynamique de Boltzmann une polarisation :

$$M = \frac{\exp(\frac{2\mu B}{k_B T}) - 1}{\exp(\frac{2\mu B}{k_B T}) + 1} \approx \frac{\mu B}{k_B T} \approx \frac{\gamma_0 \hbar B}{2k_B T} \quad (1.2)$$

où μ est le moment magnétique nucléaire de l'hélium-3 (1.074×10^{-26} J/Tesla), k_B est la constante de Boltzmann (1.38×10^{-23} J/K) et γ_0 est le rapport gyromagnétique nucléaire de l'hélium-3 ($2\pi \times 32.43601 \times 10^6$ rad.s⁻¹/T). Ce qui constitue de très faibles polarisations (4×10^{-6} à 1.5 Tesla) par rapport à celles requises pour les applications d'hélium-3 gazeux polarisé. Pour obtenir des polarisations nucléaires importantes dans l'hélium-3 gazeux, il existe deux autres méthodes faisant appel au pompage optique [Kas66]. Ces deux techniques de polarisation combinent le pompage optique d'une espèce atomique et le transfert de la polarisation dans le niveau fondamental de l'hélium-3 grâce à des processus collisionnels.

1.2 Rappels sur le pompage optique par échange de spin

Une méthode de polarisation par pompage optique est fondée sur les collisions dites d'échange de spin entre un atome alcalin (généralement le rubidium) et un atome d'hélium-3 [Wal97]. Le rubidium est polarisé par pompage optique en utilisant la transition atomique $5S_{1/2}$ - $5P_{1/2}$ qui correspond à $\lambda = 795$ nm. Lors d'une collision entre un atome de rubidium polarisé électroniquement et un atome d'hélium-3, le couplage hyperfin entre l'électron externe de l'alcalin et le noyau du gaz rare agit ; il s'ensuit un transfert de la polarisation électronique de l'alcalin vers le niveau fondamental de l'hélium-3 [Bou60]. Le processus de la collision Rb-He a une section efficace très faible, de l'ordre de 10^{-24} cm².

Le rubidium, qui est préféré par rapport aux autres alcalins, est pompé par un réseau de diodes lasers émettant une centaine de Watts avec une largeur spectrale

de plusieurs nm. La pression du gaz est élevée, de l'ordre de plusieurs bars. Des températures de l'ordre de 170-200°C sont requises pour créer une vapeur de rubidium.

Dans ces conditions, le pompage optique par échange de spin permet de polariser des échantillons d'hélium-3, à des pressions de plusieurs bars, avec des polarisations de l'ordre de 0.25-0.45 [Ric02]. Grâce au développement de lasers, il est possible d'obtenir dans de bonnes conditions des polarisations de l'ordre de 0.65-0.7 [Cha03]. Un inconvénient majeur de cette méthode est la lenteur du processus puisque la polarisation se construit au bout de plusieurs voire plusieurs dizaines d'heures.

Depuis plusieurs années, cette voie de polarisation par pompage optique fait l'objet de diverses études afin d'améliorer ses performances notamment en termes de temps de production de l'aimantation. Des études entreprises en 1998 montrent que dans des conditions de pompage optique, l'efficacité de l'échange de spin lors de la collision entre l'alcalin et l'hélium-3 est 10 fois plus importante si l'alcalin est le potassium et non le rubidium : quatre photons absorbés par un atome de potassium seraient nécessaires pour polariser un noyau d'hélium-3, alors que près de cinquante photons absorbés par un atome de rubidium sont nécessaires pour polariser le noyau d'hélium-3 [Bar98]. Récemment, des expériences utilisant une vapeur hybride de potassium et de rubidium ont été réalisées [Bab03]. Le rubidium est initialement polarisé en excitant la transition atomique à 795 nm et il transfère sa polarisation au potassium lors de processus collisionnel de section efficace élevée (près de 2×10^{-14} cm²). La polarisation est ensuite transférée aux atomes d'hélium-3 par des collisions d'échange de spin K-He et Rb-He. L'efficacité des collisions dans une vapeur riche en potassium excède d'un ordre de grandeur celle des collisions Rb-He et approche l'unité. Ce qui, au final, se traduit par une amélioration considérable du taux de production de l'aimantation par unité de temps.

1.3 Rappels sur le pompage optique par échange de métastabilité

1.3.1 Pompage optique en conditions standard

Une autre méthode de polarisation par pompage optique utilise les collisions dites d'échange de métastabilité entre des atomes d'hélium-3 dans l'état métastable 2^3S_1 et dans l'état fondamental 1^1S_0 [Sch63], [Col63].

Le principe de la méthode (voir Fig.1.1) mise au point dans les années 60 par Colegrove, Franken et Schearer peut être résumé en trois étapes :

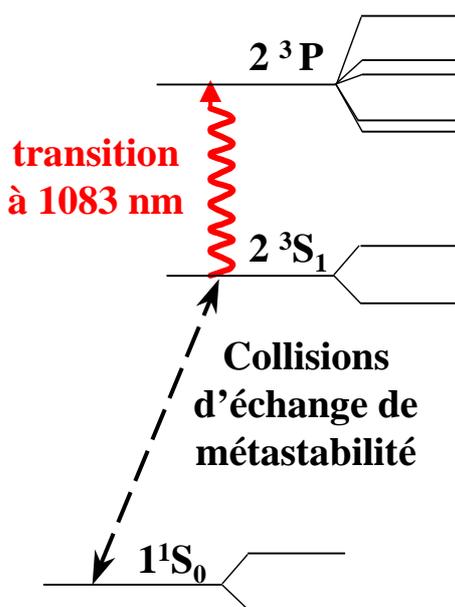


FIG. 1.1 – Schéma illustrant les premiers niveaux de l'hélium-3 intervenant dans le pompage optique par échange de métastabilité.

1. Une décharge permet de peupler l'état métastable 2^3S_1 dans l'hélium-3 après une cascade radiative.
2. Les atomes dans l'état métastable sont orientés par pompage optique en utilisant la transition 2^3S_1 - 2^3P à $\lambda = 1083$ nm. Grâce au couplage hyperfin, la polarisation est transférée aux noyaux des atomes métastables.
3. Lors d'une collision d'échange de métastabilité, un atome dans l'état fondamental $\text{He}(1^1S_0)$ et un atome métastable polarisé nucléairement $\text{He}_\uparrow(2^3S_1)$ échangent leur état d'excitation électronique [Dup71], [Dup73]. L'atome He se trouve alors polarisé nucléairement dans son état fondamental.

La structure des niveaux impliqués dans la transition atomique 2^3S_1 - 2^3P est illustrée dans la Fig.1.2. L'état métastable 2^3S_1 comporte deux niveaux hyperfins $F = 3/2$ et $F = 1/2$ séparés de 6.74 GHz dans un champ magnétique de l'ordre du mTesla, soit six sous-niveaux Zeeman notés A_i ($i = 1, \dots, 6$) par ordre croissant d'énergie. Le niveau 2^3P a cinq sous-niveaux hyperfins (deux niveaux de $F = 1/2$, deux niveaux de $F = 3/2$ et un niveau de $F = 5/2$), soit dix-huit sous-niveaux Zeeman notés B_j ($j = 1, \dots, 18$) par ordre croissant d'énergie.

Habituellement, le pompage optique par échange de métastabilité de l'hélium-

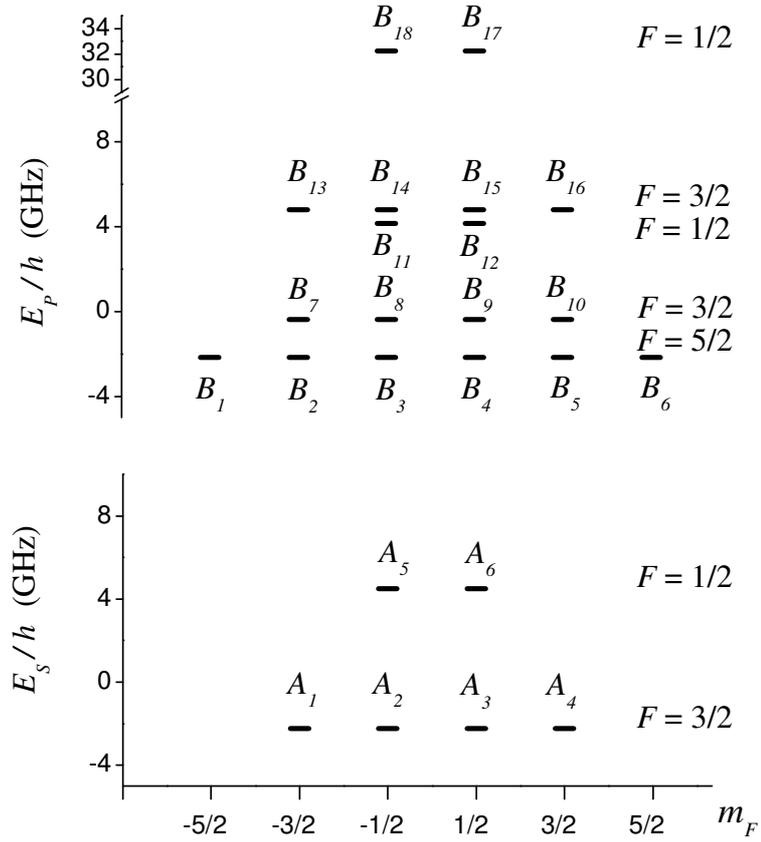


FIG. 1.2 – Diagramme montrant les positions énergétiques, en champ magnétique de l'ordre du mTesla, des sous-niveaux Zeeman de l'état métastable 2^3S_1 (E_S) et de l'état excité 2^3P (E_P) dans l'hélium-3. Les sous-niveaux, A_1 à A_6 et B_1 à B_{18} sont classés par ordre croissant d'énergie. Les transitions C_8 et C_9 couplent respectivement les niveaux : $2^3S_1, F = 1/2 \rightarrow 2^3P_0, F = 1/2$ et $2^3S_1, F = 3/2 \rightarrow 2^3P_0, F = 1/2$.

3 est effectué à température ambiante dans un champ magnétique statique de l'ordre du mTesla. Les meilleures performances du pompage optique en termes de polarisation nucléaire stationnaire et taux de production de l'aimantation sont obtenues en excitant la transition C₈ ($2^3S_1, F = 1/2 \rightarrow 2^3P_0, F = 1/2$) ou la transition C₉ ($2^3S_1, F = 3/2 \rightarrow 2^3P_0, F = 1/2$). Le choix de la raie excitée est effectué selon la pression du gaz [Nac85b], [Gen93] : pour un gaz de pression inférieure à 1 mbar, le laser pompe est accordé sur la transition C₈ alors qu'il est accordé sur C₉ pour des pressions de l'ordre de 1 mbar. Des polarisations nucléaires de l'ordre de 0.8-0.9 [Big92], [Gen93], [Bat05] sont atteintes à des pressions de l'ordre du mbar grâce au développement de lasers dédiés au pompage optique [Dan87], [Che97], [Gen03], [Tas04]. Les taux de production de l'aimantation par unité de temps dépendent fortement de l'intensité laser incidente ainsi que de l'intensité de la décharge excitatrice [Gen93], [Cou01], [Wol04]. Compte tenu de sa grande efficacité, à la fois en termes de polarisation et de temps de production de l'aimantation, c'est cette méthode qui est souvent choisie.

1.3.2 Dépendance des résultats vis à vis de la pression

En polarisant le gaz à des pressions supérieures au mbar, les polarisations nucléaires atteintes sont moins importantes. Leurs valeurs diminuent progressivement au fur et à mesure que la pression augmente. Cette variation de la polarisation avec la pression est illustrée dans la Fig.1.3. Des collisions à 3 corps avec le fondamental ainsi que des collisions Penning auto-ionisantes pourraient affecter le pompage optique à forte pression et limiter son efficacité.

Les collisions Penning auto-ionisantes décrites par :



constituent un processus qui contribue au raccourcissement de la durée de vie des atomes métastables dans les conditions de pompage optique [Sch69]. En limitant la densité d'atomes métastables, les collisions Penning, processus non-linéaires, pourraient affecter les performances du pompage optique aux pressions élevées. En fait, en augmentant la pression du gaz, le nombre d'atomes dans le niveau fondamental est augmenté. Le rapport entre la densité d'atomes métastables et la densité d'atomes fondamentaux devient alors moins favorable au pompage optique.

La diminution de la polarisation avec la pression pourrait aussi être expliquée par une augmentation de la fréquence des processus à 3 corps tels que ceux décrits par :



He* étant un atome d'hélium dans l'état métastable 2^3S_1 ou dans l'état excité 2^3P [Emm88], [Zha93]. Des collisions similaires aux collisions d'échange de

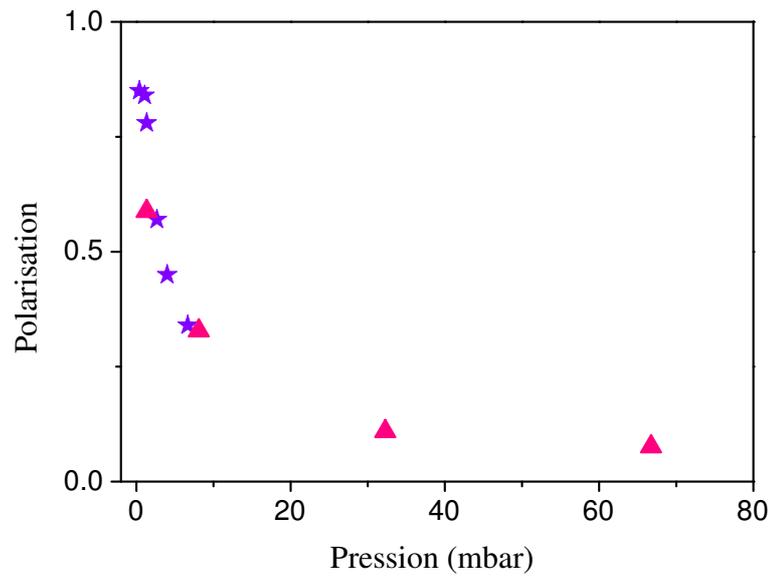


FIG. 1.3 – Polarisations stationnaires obtenues par pompage optique par échange de métastabilité en champ magnétique statique de l'ordre du mTesla en fonction de la pression du gaz. Le pompage est effectué en excitant la raie C_9 . Les étoiles correspondent aux résultats publiés dans la référence [Gen93], obtenus avec une puissance laser de 4.5 W. Les données en triangles sont des résultats obtenus dans des cellules scellées d'hélium-3 cylindriques de dimensions $5\text{ cm} \times 5\text{ cm}$ avec une puissance laser de 2 W (paragraphe 7.1).

métastabilité et intervenant entre les molécules métastables et les atomes polarisés pourraient probablement être à l'origine d'une relaxation supplémentaire de la polarisation à forte pression. Le canal de relaxation s'expliquerait par une thermalisation rapide du moment nucléaire par couplage spin-orbite dans les divers états rotationnels de la molécule [Cou01]. Des expériences de pompage optique réalisées à 40 mbar ont montré une très faible dépendance de la polarisation stationnaire vis à vis de l'intensité du laser pompe alors que les temps de construction de la polarisation se raccourcissaient en augmentant l'intensité laser. Ces observations ont permis de suggérer l'existence de processus de relaxation de la polarisation qui augmentent avec l'intensité laser, sans pour autant directement démontrer que les molécules métastables en sont responsables [Cou01].

1.3.3 Dépendance des résultats vis à vis du champ magnétique

Effets bénéfiques du découplage hyperfin

En variant l'intensité du champ magnétique, le couplage hyperfin intervenant dans les divers états excités atomiques et moléculaires peut perdre de son efficacité et indirectement contribuer à l'amélioration des résultats du pompage optique.

i- Au niveau des états atomiques :

Lors du pompage optique, une décharge est entretenue dans la vapeur atomique : les atomes sont portés dans un grand nombre de niveaux excités, au cours de collisions qui ne détruisent pas leur orientation nucléaire. Le couplage hyperfin peut transférer une partie de l'orientation du spin nucléaire au moment électronique. Quand l'atome se désexcite radiativement, cette orientation électronique est dissipée sous forme de lumière polarisée [Lal71]. Ce processus est à la base d'une méthode optique de mesure de la polarisation nucléaire [Pin74], [Sto96b].

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. Son effet bénéfique se manifeste par une réduction de la perte d'orientation nucléaire dans ces états excités, et il peut expliquer l'amélioration obtenue dans certaines conditions. Expérimentalement, ceci se manifeste par l'allongement des temps de relaxation de la polarisation en présence de la décharge. L'ordre de grandeur du champ magnétique nécessaire au découplage hyperfin dans la cascade radiative est ~ 10 mT [Lal71]. Des études de l'efficacité du pompage optique dans un champ magnétique pouvant aller jusqu'à 30 mTesla sont actuellement en cours dans notre groupe, en collaboration avec le groupe du Pr. W. Heil à l'Université de Mayence [Bat].

ii- Au niveau des états moléculaires :

Des expériences de fluorescence induite par laser à 465 nm entreprises dans [Cou01]

ont permis d'étudier la variation de population de molécules métastables He_2^* induite par la lumière à 1083 nm. En accordant le laser pompe (intensité allant jusqu'à 225 W/cm^2) sur la transition $\text{C}_2\text{-C}_5$ (voir spectre de l'hélium-3 en faible champ magnétique illustré dans la Fig.2.4), la population des molécules métastables a augmenté jusqu'à un facteur de l'ordre de 5 dans une cellule à 40 mbar; dans des cellules cylindriques de dimensions $5 \text{ cm} \times 5 \text{ cm}$, des augmentations jusqu'à un facteur de l'ordre de 2 (1.7 à 8 mbar et 2.4 à 32 mbar) ont été observées.

Ces mesures n'ont pas permis de rendre compte de manière quantitative de l'augmentation des processus de relaxation en présence du laser pompe en fonction de la pression. Toutefois, elles ont clairement mis en évidence une augmentation de la densité de molécules métastables He_2^* dans le plasma en présence de lumière de pompage optique à 1083 nm.

Même si, aucun lien direct n'a été établi entre la présence de ces molécules et une relaxation importante, il est raisonnable de penser qu'un découplage hyperfin intervenant au niveau des états moléculaires pourrait diminuer la relaxation et améliorer les performances du pompage optique aux pressions élevées.

Étude antérieure du pompage optique en champ magnétique intense

Des études de l'efficacité du pompage optique par échange de spin du xénon-129 dans un champ magnétique intense de 7.04 Tesla ont montré une amélioration des résultats par rapport au pompage dans un champ magnétique de 2.35 Tesla. Cette amélioration était essentiellement due à une suppression des processus de relaxation vers les parois de la cellule [Aug96].

Pour le pompage optique de l'hélium-3 par échange de métastabilité, des expériences préliminaires ont été effectuées en champ magnétique intense, à 0.1 Tesla [Flo90] et à 0.6 Tesla [Flo97] à des pressions de l'ordre de 4 mbar. Mais, aucune étude systématique des processus de pompage optique en champ magnétique intense et aux fortes pressions n'a été menée dans ce cadre.

Les premières études de pompage optique à 0.1 Tesla et à pression élevée ont été réalisées dans notre groupe [Cou01]. Des mesures de pompage optique à 0.1 Tesla ont également été effectuées pendant mon stage de DEA [Nac02]. Nous reproduisons dans la table 1.1 quelques-uns des résultats marquants.

L'application du champ magnétique intense améliore significativement l'efficacité du pompage optique aux pressions élevées : les polarisations obtenues à 0.1 Tesla sont typiquement augmentées d'un facteur 1.6 à 8 mbar et d'un facteur 2 à 32 mbar par rapport à celles obtenues en champ magnétique de l'ordre du mTesla et dans des conditions identiques de laser pompe. Ces résultats positifs montrent les effets bénéfiques d'un champ magnétique intense sur le pompage optique par échange de métastabilité à des pressions supérieures au mbar.

TAB. 1.1 – Polarisation nucléaires stationnaires M_{stat} obtenues pour un pompage optique à 0.115 Tesla et 1 mTesla dans des cellules cylindriques d’hélium-3 (dimensions 5 cm×5 cm) à 8 mbar et 32 mbar [Nac02]. Le laser pompe est une diode laser amplifiée (paragraphe 3.4.2). La puissance incidente au niveau de la cellule est 500 mW. Le laser est polarisé σ^- et est accordé sur la raie C_9 .

Pression (mbar)	M_{stat} à $\mathbf{B}=1$ mTesla	M_{stat} à $\mathbf{B}=0.115$ Tesla
8	0.183 ± 0.007	0.285 ± 0.003
32	0.075 ± 0.005	0.147 ± 0.006

À la lumière de ces améliorations, il est tentant d’augmenter l’intensité du champ magnétique et d’étudier les performances du pompage optique à pression élevée. Bien évidemment, l’intensité du champ magnétique ne peut pas être augmentée indéfiniment en vue d’améliorer les performances du pompage aux hautes pressions. Le découplage hyperfin dans le niveau métastable 2^3S_1 déterminera la valeur maximale du champ magnétique à partir de laquelle la polarisation créée par pompage optique dans le niveau métastable restera purement électronique.

Toutefois, dans un large intervalle de champ magnétique allant jusqu’à quelques Tesla, l’étude des performances du pompage optique par échange de métastabilité est possible. Notre étude à 1.5 Tesla, intensité du champ magnétique des imageurs cliniques, s’inscrit dans ce contexte.

Par ailleurs, une étude en fonction du champ pourrait révéler l’existence d’un champ magnétique optimal. De plus, la dépendance des résultats en fonction de l’intensité du champ magnétique pourrait fournir une signature du type de découplage hyperfin pertinent.

Chapitre 2

Modélisations du pompage optique à 1.5 Tesla

Les premiers modèles élaborés historiquement pour décrire le processus de pompage optique par échange de métastabilité convenaient aux premières expériences de pompage avec des lampes d'hélium [Sch63]. Les polarisations nucléaires étant faibles, il était possible de linéariser les équations bilan d'évolution de la polarisation [Lal68]. Depuis le développement de lasers dédiés au pompage optique et de forte puissance, des modèles plus complets et adaptés aux fortes puissances laser et à des polarisations élevées ont été mis en place [Nac85a], [Nac85b]. Dans ce chapitre, nous procédons à une modélisation du pompage optique par échange de métastabilité à 1.5 Tesla et aux fortes pressions en nous inspirant des modèles déjà établis. Comme la structure atomique des différents niveaux de l'hélium-3 n'est pas la même en faible champ magnétique et à 1.5 Tesla à cause de l'effet Zeeman, notre modèle doit en tenir compte.

Nous commençons donc dans un premier temps par détailler la structure atomique de l'hélium-3 à 1.5 Tesla, notamment les positions énergétiques des différents sous-niveaux A_i ($i = 1, \dots, 6$) et B_j ($j = 1, \dots, 18$) de l'état métastable 2^3S_1 et de l'état excité 2^3P , ainsi que les transitions atomiques couplant les deux états. Nous décrivons également les raies atomiques utilisées pour le pompage optique à 1.5 Tesla en mettant en valeur leurs spécificités.

Ensuite, nous décrivons les processus physiques intervenant dans le mécanisme du pompage optique par échange de métastabilité : les interactions entre les atomes et la lumière laser, les collisions d'échange de métastabilité et les processus de relaxation intervenant dans les divers états atomiques de l'hélium-3.

Finalement, nous proposons des modèles simples permettant de décrire de façon aussi réaliste que possible les effets conjugués de ces différents processus au sein d'un gaz d'hélium-3 soumis à un pompage optique laser à 1.5 Tesla.

2.1 Structure atomique de l'hélium-3 et nature des transitions

2.1.1 Structure atomique des niveaux de l'hélium-3

Des calculs détaillés dans la référence [Cou02] permettent d'obtenir la structure atomique de l'hélium-3 en fonction du champ magnétique \mathbf{B} . Nous les reprenons succinctement ici avant de détailler la structure des niveaux à 1.5 Tesla.

La structure des niveaux de l'hélium-3 est déterminée par l'Hamiltonien total H du système :

$$H = H_f + H_{hf} + H_z \quad (2.1)$$

où H_f et H_{hf} sont les Hamiltoniens qui décrivent les interactions fine et hyperfine et où H_z est l'Hamiltonien Zeeman qui prend en considération l'interaction entre les spins électroniques et nucléaires avec le champ magnétique [Coh73], [Cou02]. L'Hamiltonien hyperfin s'écrit :

$$H_{hf} = A_L \mathbf{I} \cdot \mathbf{S} + H_{hf}^{corr} \quad (2.2)$$

où $\mathbf{I} \cdot \mathbf{S}$ représente le couplage entre les spins nucléaire \mathbf{I} et électronique \mathbf{S} pour un niveau de moment orbital donné L (pour le niveau 2^3S_1 , $A_S = -4.49$ GHz et pour le niveau 2^3P , $A_P = -4.28$ GHz) et H_{hf}^{corr} un terme supplémentaire existant pour l'état 2^3P [Cou02]. L'Hamiltonien Zeeman s'écrit :

$$H_z = \mu_B (g'_L \mathbf{L} + g'_S \mathbf{S} + g_I \mathbf{I}) \cdot \mathbf{B} \quad (2.3)$$

μ_B étant le magnéton de Bohr, g'_L , g'_S et g_I étant respectivement les rapports gyromagnétiques du moment angulaire orbital, de spin électronique et nucléaire.

Après un rappel sur la résolution analytique de l'Hamiltonien dans le niveau métastable, nous reprenons les résultats du calcul numérique basé sur la diagonalisation de H et détaillé dans [Cou02].

Étant donné l'Hamiltonien total dans l'état 2^3S_1 couplant les états $|m_S, m_I\rangle$ d'un m_F donné, les états propres et valeurs propres peuvent être obtenus analytiquement. Nous introduisons à cet égard le champ magnétique réduit b et le rapport ϵ :

$$b = -g'_S \mu_B B / A_S \quad (2.4)$$

$$\epsilon = g_I / 2g'_S \quad (2.5)$$

Les sous-niveaux métastables de $m_F = \pm 3/2$, $| -1, -\rangle$ et $|1, +\rangle$, sont des états propres d'énergie respective :

$$W_{\pm} = 1/2 \pm b(1 + \epsilon) \quad (2.6)$$

où les indices $+$ et $-$ représentent le signe de m_F . Pour les sous-niveaux de $m_F = +1/2$, la matrice de l'Hamiltonien réduit ($H_{hf} + H_z/A_S$) s'écrit dans la base $\{|0, +\rangle, |1, -\rangle\}$:

$$\begin{pmatrix} -b\epsilon & 1/\sqrt{2} \\ 1/\sqrt{2} & -b(1-\epsilon) - 1/2 \end{pmatrix} \quad (2.7)$$

Il suffit de remplacer b par $-b$ dans l'Eq.2.7 pour obtenir la matrice correspondant aux sous-niveaux de $m_F = -1/2$. Les énergies propres des sous-niveaux de $m_F = +1/2$ et $m_F = -1/2$ sont :

$$W_+^{h,l} = -\frac{A_S}{4} \left(1 + 2b \pm \sqrt{9 + 4b + 4b^2 - 8b\epsilon - 16b^2\epsilon(1-\epsilon)} \right) \quad (2.8)$$

$$W_-^{h,l} = -\frac{A_S}{4} \left(1 - 2b \pm \sqrt{9 - 4b + 4b^2 + 8b\epsilon - 16b^2\epsilon(1-\epsilon)} \right) \quad (2.9)$$

où les indices h et l correspondent aux états de plus forte et plus basse énergie respectivement. En écrivant les angles θ_+ et θ_- caractérisant le taux de mélange nucléaire tels que :

$$\begin{aligned} \tan \theta_+ &= -\sqrt{2}(W_+^h/A_S + 1/2 + b(1-\epsilon)) \\ \tan \theta_- &= -\sqrt{2}(W_-^h/A_S - b\epsilon) \end{aligned} \quad (2.10)$$

les états propres s'écrivent :

$$\begin{aligned} A_+^h &= -\sin \theta_+ |0, +\rangle + \cos \theta_+ |1, -\rangle \\ A_+^l &= \cos \theta_+ |0, +\rangle + \sin \theta_+ |1, -\rangle \\ A_-^h &= -\sin \theta_- | -1, +\rangle + \cos \theta_- |0, -\rangle \\ A_-^l &= \cos \theta_- | -1, +\rangle + \sin \theta_- |0, -\rangle \end{aligned} \quad (2.11)$$

Les variations des angles θ_+ et θ_- en fonction du champ magnétique sont présentées dans la Fig.2.1. En faible champ magnétique, un fort couplage hyperfin se manifeste par l'important mélange des états :

$$\begin{aligned} \sin^2 \theta_+ &= 1/3 \\ \sin^2 \theta_- &= 2/3 \end{aligned} \quad (2.12)$$

Ce mélange est fortement réduit en fort champ magnétique; pour $B > 1$ Tesla, nous obtenons :

$$\sin^2 \theta_{\pm} \sim 0.012/B^2 \quad (2.13)$$

Dans la suite, nous utilisons une autre nomenclature pour identifier les sous-niveaux du 2^3S_1 tout en les classant par ordre croissant d'énergie : A_i avec ($i = 1, \dots, 6$). En faible champ magnétique, les sous-niveaux A_1 à A_4 correspondent au niveau $F = 3/2$, alors que A_5 et A_6 correspondent au niveau $F = 1/2$ (voir la Fig.1.2). En augmentant le champ magnétique, un premier

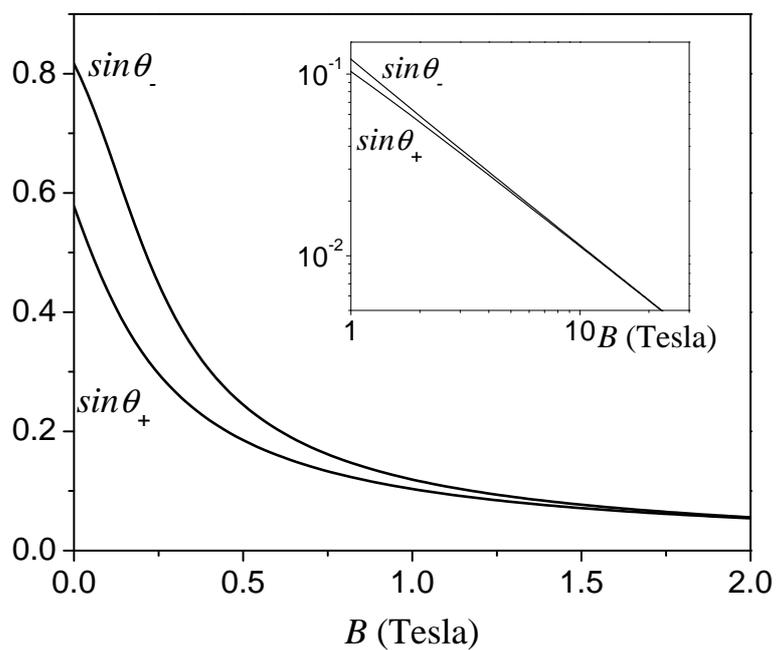


FIG. 2.1 – Variations de $\sin \theta_+$ et $\sin \theta_-$ en fonction du champ magnétique B d'après la référence [Cou02]. En Insert, nous présentons le comportement asymptotique en fort champ magnétique.

croisement de sous-niveaux entre A_4 et A_5 apparaît à 0.1619 Tesla ; A_5 devient alors le sous-niveau $|1, +\rangle$ correspondant à $m_F = 3/2$. Un deuxième croisement de sous-niveaux entre A_3 et A_4 apparaît à 4.716 Tesla.

À 1.5 Tesla, et en tenant compte des croisements de sous-niveaux, les états propres du niveau 2^3S_1 s'écrivent dans la base découplée $|m_J, m_I\rangle$ comme :

$$\begin{aligned}
A_1 &= |-1, -\rangle \\
A_2 &= \cos\theta_- |-1, +\rangle + \sin\theta_- |0, -\rangle \\
A_3 &= \cos\theta_+ |0, +\rangle + \sin\theta_+ |1, -\rangle \\
A_4 &= -\sin\theta_- |-1, +\rangle + \cos\theta_- |0, -\rangle \\
A_5 &= |1, +\rangle \\
A_6 &= -\sin\theta_+ |0, +\rangle + \cos\theta_+ |1, -\rangle
\end{aligned} \tag{2.14}$$

avec

$$\begin{aligned}
\sin\theta_- &= 0.07697 \\
\sin\theta_+ &= 0.07128
\end{aligned} \tag{2.15}$$

Les positions énergétiques des sous-niveaux A_i s'étendent sur près de 80 GHz. Les six sous-niveaux métastables sont répartis en trois paires de sous-niveaux quasi-dégénérés (A_1, A_2) , (A_3, A_4) , (A_5, A_6) comme illustré dans la Fig.2.2. Ces trois paires correspondent respectivement à $m_J = -1, 0, 1$ dans la limite de champ magnétique infini ($B \rightarrow \infty$).

L'Hamiltonien dans l'état excité 2^3P ne peut être résolu analytiquement vu sa complexité et le grand nombre de sous-niveaux qui entrent en jeu. Un calcul numérique basé sur la diagonalisation de l'Hamiltonien H (Eq.2.1) dans le niveau 2^3P est détaillé dans la référence [Cou02] ; les auteurs y procèdent à une généralisation en champ magnétique quelconque des résultats de [Nac85b], avec une précision de l'ordre du MHz pour les écarts énergétiques des niveaux. Les positions énergétiques E_S et E_P des sous-niveaux du 2^3S_1 et 2^3P sont représentées en fonction du champ magnétique dans la Fig.2.3. Les sous-niveaux du 2^3P sont nommés B_j ($j = 1, \dots, 18$) par ordre croissant d'énergie. Dans l'état 2^3P , plusieurs croisements et anti-croisements de sous-niveaux sont observés en augmentant le champ magnétique. La complexité de la situation est illustrée dans le graphe supérieur de la Fig.2.3. À 1.5 Tesla, les positions énergétiques des sous-niveaux B_j s'étendent sur près 120 GHz (Fig.2.2).

2.1.2 Transitions atomiques à 1.5 Tesla

Sont aussi calculés, dans la référence [Cou02], les éléments T_{ij} de la matrice de transition d'un sous-niveau A_i à un sous-niveau B_j ainsi que les fréquences des transitions $\omega_{ij}/2\pi$ pour les trois vecteurs polarisation \mathbf{e}_λ de la lumière monochromatique (σ^+ , σ^- et π par rapport à l'axe de quantification choisi dans notre

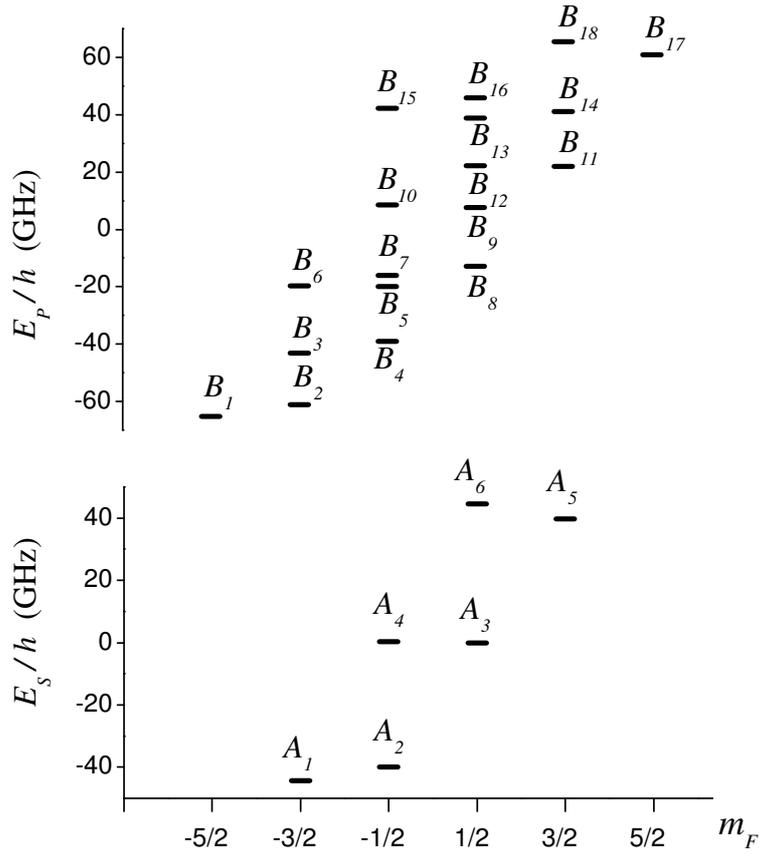


FIG. 2.2 – Diagramme montrant les positions énergétiques à 1.5 Tesla des sous-niveaux Zeeman de l'état métastable 2^3S_1 (E_S) et de l'état excité 2^3P (E_P) dans l'hélium-3. Les sous-niveaux, A_1 à A_6 et B_1 à B_{18} sont classés par ordre croissant d'énergie.

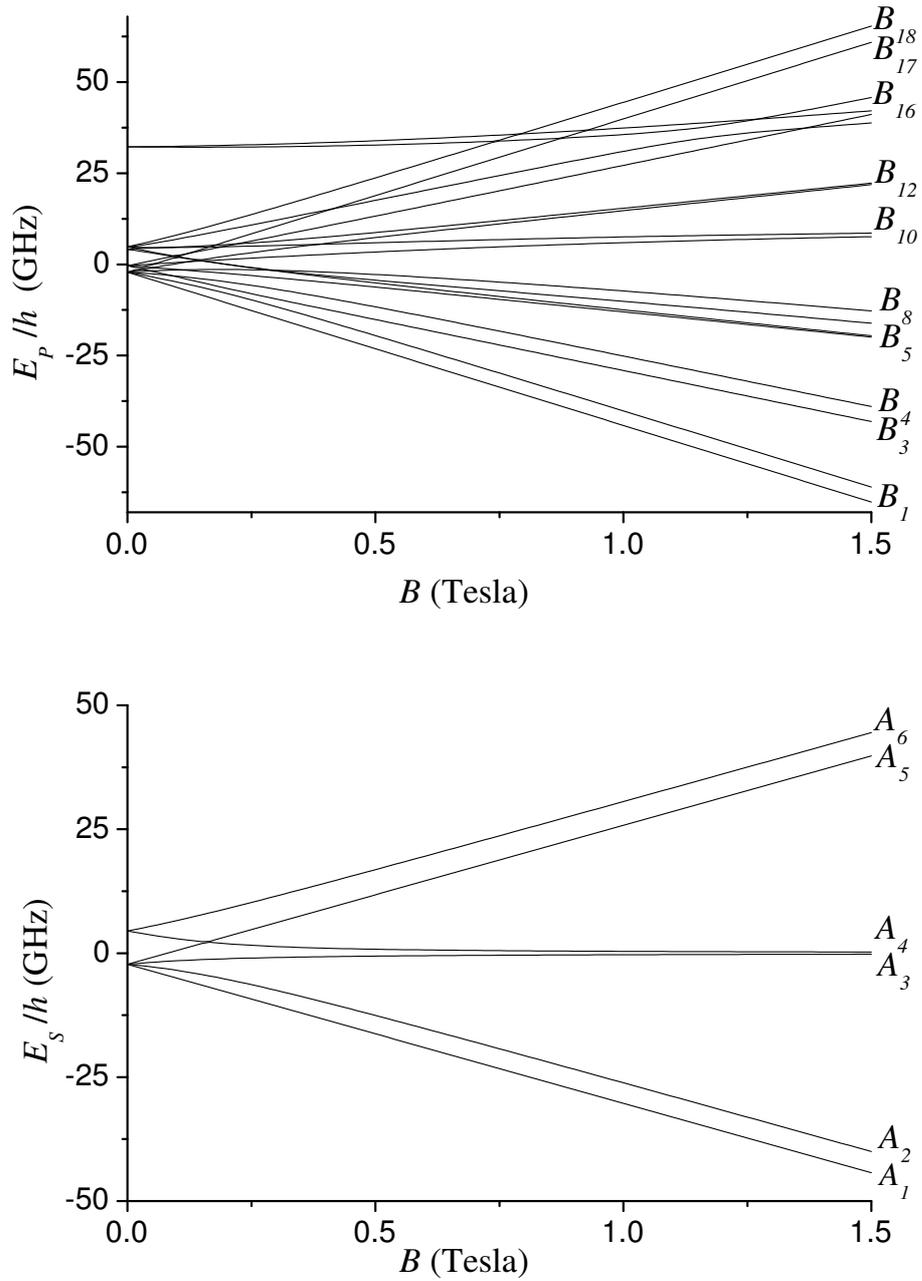


FIG. 2.3 – Valeurs propres de l’Hamiltonien H caractérisant les positions énergétiques des sous-niveaux Zeeman de l’état métastable 2^3S_1 (E_S) et de l’état excité 2^3P (E_P) dans l’hélium-3 en fonction du champ magnétique. Les sous-niveaux, A_1 à A_6 et B_1 à B_{18} sont classés par ordre croissant d’énergie. Les positions énergétiques des niveaux 2^3S_1 et 2^3P sont définies par rapport aux positions énergétiques des sous-niveaux du 2^3S_1 et du 2^3P_2 de l’hélium-4 en faible champ magnétique.

cas dans la direction du champ magnétique). Les éléments T_{ij} nécessaires pour déterminer la probabilité d'une transition A_i - B_j dans le cadre d'une approximation dipolaire électrique (voir Eqs.2.21 à 2.31) vérifient :

$$\sum_{i,j} T_{ij}(\mathbf{e}_\lambda) = 6 \quad . \quad (2.16)$$

Dans les tables 2.1 et 2.2, nous écrivons les fréquences des transitions E_{ij}/h ainsi que les éléments de la matrice de transition T_{ij} à 1.5 Tesla. Les deux tables contiennent les caractéristiques des transitions pour les deux hélicités de la lumière σ^- et σ^+ . Les fréquences des transitions calculées E_{ij}/h correspondent aux écarts entre les fréquences optiques $\omega_{ij}/2\pi$ et la fréquence en champ magnétique nul de la transition C_1 qui couple A_5 à B_7 et A_6 à B_{10} :

$$E_{ij}/\hbar = \omega_{ij} - \omega_{57(B=0)} = \omega_{ij} - \omega_{610(B=0)} \quad . \quad (2.17)$$

Les transitions optiques détaillées dans les tables 2.1 et 2.2 donnent lieu aux spectres d'absorption présentés dans la Fig.2.4. Le spectre de la transition 2^3S_1 - 2^3P couvre une plage fréquentielle de 130 GHz environ, presque le triple de son étendue en champ magnétique faible de l'ordre du mTesla (environ 40 GHz). Compte tenu de l'élargissement Doppler dans les conditions expérimentales (Eq.2.25) et les écarts Zeeman, certaines raies d'absorption ne comportent pas une seule transition. C'est le cas des quatre raies désignées sur les spectres par f_{4m} , f_{2m} , f_{4p} et f_{2p} comme le montrent les agrandissements dans la Fig.2.4.

2.1.3 Caractéristiques des raies de pompage à 1.5 Tesla

Dans ce paragraphe, nous décrivons qualitativement le comportement des diverses raies atomiques utilisées pour le pompage optique à 1.5 Tesla en nous servant de leurs compositions et de leurs caractéristiques spectrales. L'effet des diverses transitions sur les performances du pompage optique en termes de polarisation nucléaire et taux de production de l'aimantation est décrit et discuté plus loin dans le mémoire, dans les chapitres 5 et 6.

Les raies intéressantes pour le pompage optique sont *a priori* les raies intenses ; en effet, une lumière laser excitant ces raies serait efficacement absorbée par les atomes métastables. En faible champ magnétique, les raies C_2 - C_5 sont assez intenses (Fig.2.4). Malheureusement, ces raies pompent les atomes dans des directions opposées [Nac85a], [Nac85b] ; il s'ensuit un bilan médiocre de transfert de moment angulaire et donc des polarisations nucléaires négligeables. Les utilisateurs ont alors recours aux raies C_8 et C_9 . Ces raies sont certes moins intenses (et donc moins absorbantes) mais elles ont l'avantage de ne comporter qu'une seule transition atomique ; par la suite leur excitation est à l'origine de transferts importants de moment cinétique et donc des polarisations nucléaires élevées.

TAB. 2.1 – Table comportant toutes les transitions qui couplent un sous-niveau métastable A_i à un sous-niveau B_j de l'hélium-3 à 1.5 Tesla et qui correspondent à une lumière polarisée σ^- par rapport à l'axe de quantification. Les poids des raies vérifient l'Eq.2.16. Les fréquences des transitions E_{ij}/h sont définies d'après l'Eq.2.17.

σ^-				
A_i	B_j	E_{ij}/h (GHz)	T_{ij}	
A_3	B_{15}	47.180229	0.00039794	
A_2	B_6	25.277213	0.00003523	
A_3	B_{10}	13.643245	0.00019145	
A_5	B_{16}	10.853061	0.01754658	
A_5	B_{13}	3.862633	0.72521033	f_{2m}
A_6	B_{15}	2.492549	0.79870889	f_{2m}
A_2	B_3	1.766519	0.00002668	
A_3	B_7	-11.071118	0.00847502	
A_5	B_{12}	-12.645035	0.00505684	
A_3	B_5	-14.880590	0.98713020	f_{4m}
A_4	B_6	-14.968058	0.99761896	f_{4m}
A_1	B_1	-16.031775	1.00000000	f_{4m}
A_2	B_2	-16.189945	0.99993809	f_{4m}
A_5	B_9	-27.366056	0.24006702	
A_6	B_{10}	-31.044433	0.18991807	
A_3	B_4	-33.927185	0.00380538	
A_4	B_3	-38.478752	0.00234879	
A_5	B_8	-47.739238	0.01211922	
A_6	B_7	-55.758797	0.01134465	
A_4	B_2	-56.435216	0.00003224	
A_6	B_5	-59.568267	0.00000531	
A_6	B_4	-78.614864	0.00002308	

TAB. 2.2 – Table comportant toutes les transitions qui couplent un sous-niveau métastable A_i à un sous-niveau B_j de l'hélium-3 à 1.5 Tesla et qui correspondent à une lumière polarisée σ^+ par rapport à l'axe de quantification. Les poids des raies vérifient l'Eq.2.16. Les fréquences des transitions E_{ij}/h sont définies d'après l'Eq.2.17.

σ^+				
A_i	B_j	E_{ij}/h (GHz)	T_{ij}	
A_1	B_{15}	91.284111	0.05485464	
A_2	B_6	90.683717	0.00257163	
A_2	B_{13}	83.693289	0.07192920	
A_3	B_{18}	70.436076	0.00000159	
A_2	B_{12}	67.185620	0.00001015	
A_1	B_{10}	57.747127	0.06397648	
A_2	B_9	52.464599	0.07455791	
A_4	B_{16}	50.438446	0.00343398	
A_3	B_{14}	46.194254	0.00351448	
A_4	B_{13}	43.448018	0.00319161	
A_1	B_7	33.032763	0.87134058	f_{2p}
A_2	B_8	32.091417	0.85093111	f_{2p}
A_1	B_5	29.223291	0.00925515	
A_4	B_{12}	26.940349	0.99248428	f_{4p}
A_3	B_{11}	26.934537	0.99648393	f_{4p}
A_5	B_{17}	25.949784	1.00000000	f_{4p}
A_6	B_{18}	25.748397	0.99999109	f_{4p}
A_4	B_9	12.219328	0.00083127	
A_1	B_4	10.176696	0.00057315	
A_6	B_{14}	1.506575	0.00000689	
A_4	B_8	-8.153853	0.00005886	
A_6	B_{11}	-17.753142	0.00000202	

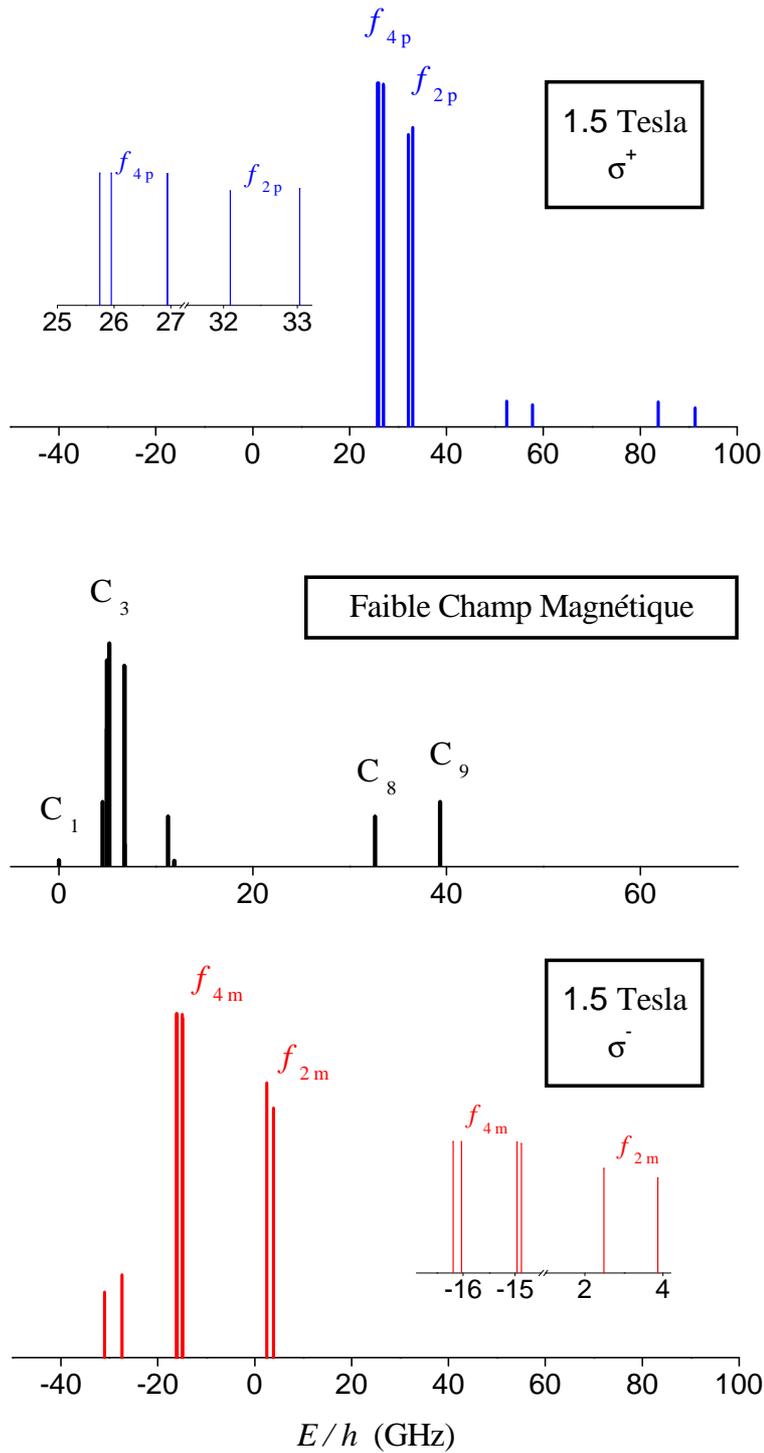


FIG. 2.4 – Positions relatives des raies de l'hélium-3 (E_{ij}/h) à 1.5 Tesla et en champ magnétique de l'ordre du mTesla. Le spectre du haut correspond à une lumière polarisée σ^+ par rapport à l'axe de quantification, celui du bas à une lumière polarisée σ^- . En faible champ magnétique, les différents spectres ne sont pas résolus. En Inserts, nous présentons des agrandissements de zones spectrales autour des raies f_{4p} , f_{2p} , f_{4m} et f_{2m} . La raie f_{4p} comporte deux transitions quasi-dégénérées à 27 GHz.

À 1.5 Tesla, les raies intenses f_{4m} , f_{2m} , f_{4p} et f_{2p} présentent un fonctionnement différent de part leurs compositions spectrales favorables au pompage optique comme expliqué ci-après. Elles s'avèrent être particulièrement propices et efficaces pour le pompage optique dans un large domaine de pressions. Les raies A_6-B_{10} à -31.04 GHz, A_5-B_9 à -27.36 GHz, A_2-B_9 à 52.46 GHz et A_1-B_{10} à 57.75 GHz n'excitent quant à elles qu'un seul sous-niveau métastable. Même si ces raies ont des comportements similaires à ceux des raies f_{2m} et f_{2p} , elles sont moins intenses (donc moins absorbantes à parité de puissance laser) et par la suite moins efficaces. Les efficacités respectives des raies sont vérifiées expérimentalement (paragraphe 5.1) et confrontées aux prédictions théoriques dans le chapitre 6.

Raies de pompage f_{2m} et f_{2p}

f_{2m} est une raie double; elle comporte deux transitions atomiques A_5-B_{13} et A_6-B_{15} à 3.86 GHz et 2.49 GHz respectivement. Ces deux transitions ont des probabilités de transition comparables ($T_{ij} \sim 0.8$) et sont distantes de 1.37 GHz environ. Étant donné l'élargissement Doppler dans les conditions expérimentales, un laser pompe polarisé σ^- et accordé sur f_{2m} excite simultanément les deux composantes de la raie. En supposant une redistribution collisionnelle dans l'état 2^3P qui tend à égaliser les populations des dix-huit sous-niveaux (discutée dans le paragraphe 2.2.3), exciter les sous-niveaux A_5 et A_6 de $m_F > 0$ par le laser pompe revient à les dépeupler et à transférer la population principalement dans les sous-niveaux de $m_F < 0$; le bilan net de transfert de moment angulaire se traduit par un alignement des spins nucléaires anti-parallèlement au champ magnétique et donc par une polarisation nucléaire $M < 0$.

La raie f_{2p} est aussi une raie double qui comporte les transitions A_1-B_7 et A_2-B_8 à 33.03 GHz et 32.09 GHz respectivement. Ces deux transitions, distantes de près de 0.94 GHz, ont des poids relatifs comparables ($T_{ij} \sim 0.9$) et sont excitées simultanément dans les conditions expérimentales de pompage optique. Dans le cadre d'une redistribution totale dans l'état 2^3P , le pompage par dépeuplement des sous-niveaux A_1 et A_2 de $m_F < 0$ conduit à un transfert de la population dans les paires de sous-niveaux (A_3, A_4) et (A_5, A_6) et donc à des polarisations nucléaires $M > 0$.

Raies de pompage f_{4m} et f_{4p}

La raie f_{4m} comporte quatre transitions atomiques A_1-B_1 , A_2-B_2 , A_3-B_5 et A_4-B_6 à -16.03 GHz, -16.19 GHz, -14.88 GHz et -14.96 GHz respectivement, avec des probabilités de transition comparables ($T_{ij} \sim 1$). Les quatre composantes s'étalent sur 1.31 GHz environ. Un laser pompe polarisé σ^- et accordé sur f_{4m} excite simultanément les quatre sous-niveaux métastables A_1 à A_4 . Dans le cadre d'un pompage par dépeuplement, l'excitation des sous-niveaux A_1 , A_2 et A_4 de

$m_F < 0$ transfère la population dans le sens des $m_F > 0$ alors que l'excitation du sous-niveau A_3 de $m_F = 1/2$ a tendance à transférer la population du côté des $m_F < 0$. Au final, l'action conjuguée de l'excitation des trois transitions A_1-B_1 , A_2-B_2 et A_4-B_6 l'emporte sur l'action antagoniste de l'excitation de la transition A_3-B_5 . La raie de pompage f_{4m} présente donc un bilan net de transfert de moment angulaire du côté des $m_F > 0$: la population est transférée dans la paire de sous-niveaux (A_5 , A_6) et des polarisations nucléaires $M > 0$ en résultent. Dans les conditions expérimentales, l'action de la transition A_3-B_5 peut être réduite en accordant le laser pompe non pas à -15.52 GHz le centre de la raie f_{4m} mais à -16.52 GHz, le flanc gauche de la raie f_{4m} (voir Fig.2.5). Nous procédons dans notre étude expérimentale à une vérification des actions cumulées (conjuguées ou antagonistes) des quatre composantes.

La raie f_{4p} est aussi intense que f_{4m} ; c'est également une raie multiple comportant quatre transitions A_3-B_{11} , A_4-B_{12} , A_5-B_{17} et A_6-B_{18} à 26.93 GHz, 26.94 GHz, 25.95 GHz et 25.75 GHz respectivement et s'étalant sur 1.20 GHz environ. L'excitation de f_{4p} grâce à un laser polarisé σ^+ dans un pompage par dépeuplement se traduit par un bilan net de transfert de la population vers les sous-niveaux de $m_F < 0$ et conduit donc à des $M < 0$.

Double sélection des raies de pompage

En conditions standard, le pompage optique par échange de métastabilité repose sur l'excitation d'une transition A_i-B_j grâce à un choix judicieux de la polarisation d'une lumière laser se propageant le long de l'axe de quantification. Dès lors, l'efficacité du pompage en termes de polarisation nucléaire atteinte dépend fortement de la pureté de la polarisation du faisceau pompe. En effet, lors d'un pompage optique avec par exemple un laser polarisé σ^- , toute fraction du faisceau de mauvaise polarisation (σ^+ dans cet exemple) reste en résonance avec la transition $2^3S_1-2^3P$ (les niveaux étant dégénérés) et elle est absorbée très efficacement. Le défaut de polarisation circulaire, même de l'ordre de 0.5 %, peut alors limiter dramatiquement la valeur de la polarisation atteinte et ses conséquences néfastes sont de plus en plus importantes que la puissance du laser pompe est élevée [Led00], [Wol04]. En fort champ magnétique, cette contrainte sur la pureté de la polarisation du faisceau laser est éliminée. En fait, grâce à l'effet Zeeman à 1.5 Tesla, les transitions optiques correspondant respectivement à une lumière polarisée circulaire droite et circulaire gauche sont spectralement résolues (voir Fig.2.5). À 1.5 Tesla, l'excitation d'une transition A_i-B_j se fait donc par un choix simultané de la polarisation de la lumière et de sa fréquence. Cet avantage du pompage optique à 1.5 Tesla s'avère particulièrement intéressant pour toutes les applications nécessitant une production massive d'hélium-3 polarisé.

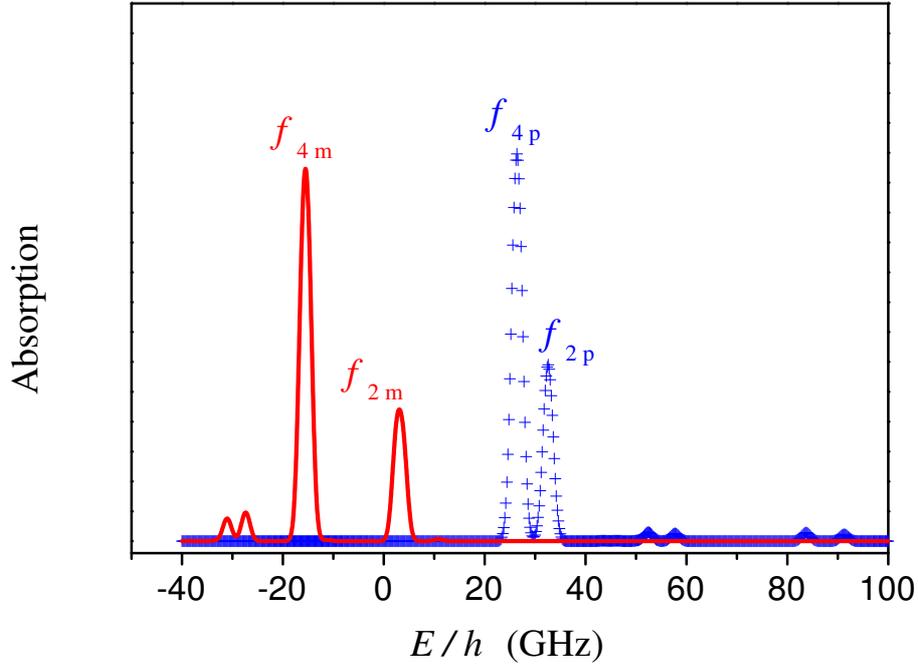


FIG. 2.5 – Spectre d’absorption de l’hélium-3 métastable à 1.5 Tesla. Ce spectre est le résultat d’un calcul en prenant une largeur gaussienne nominale de 2 GHz (FWHM, correspondant à la distribution des vitesses de l’hélium-3 à 300 K ; les autres sources d’élargissement du profil des raies atomiques sont négligées). Sont représentées en traits pleins les raies atomiques pour une lumière polarisée σ^- par rapport à l’axe de quantification, et en croix celles relatives à une lumière polarisée σ^+ . À 1.5 Tesla et à cause de la levée de dégénérescence des sous-niveaux par effet Zeeman, le spectre de la transition $2^3S_1-2^3P$ couvre une plage fréquentielle de 130 GHz environ.

2.2 Processus pris en compte pour la modélisation

Avant de présenter une modélisation du pompage optique par échange de métastabilité, nous décrivons les divers processus entrant en jeu. Nous séparons les interactions physiques en trois principaux groupes :

- Tout d'abord, nous décrivons les effets des photons en incluant l'excitation de la transition 2^3S_1 - 2^3P par pompage optique et les processus de désexcitation par émissions spontanée et induite.
- Ensuite, nous décrivons les collisions d'échange de métastabilité intervenant dans le niveau métastable et dans le niveau fondamental. Il existe dans le gaz d'autres collisions de changement de vitesse. Ces dernières sont élastiques ; leurs effets sur les variables internes des atomes (spins électroniques et nucléaires) se manifestent par les élargissements collisionnels.
- Finalement, nous considérons les processus de relaxation et de redistributions collisionnelles dans le niveau métastable 2^3S_1 et dans le niveau excité 2^3P ainsi que les processus de relaxation affectant la polarisation dans le niveau fondamental 1^1S_0 .

Nous notons les populations relatives des sous-niveaux métastables A_i par a_i . La densité d'atomes métastables dans un sous-niveau A_i est alors $n_m a_i$, avec n_m la densité totale d'atomes dans le niveau métastable 2^3S_1 . Nous notons les populations des atomes dans les sous-niveaux B_j par b_j de façon que la densité d'atomes soit $n_m b_j$. Dans toute la suite, nous nous intéressons exclusivement au régime quasi-stationnaire de l'évolution couplée de ces diverses populations. Une lente évolution de la polarisation pourra induire une évolution des populations a_i et b_j , mais nous supposons que aucune variation rapide des paramètres du pompage optique (telles qu'une modulation du plasma ou du laser) n'existe. Les valeurs des populations a_i et b_j sont donc les solutions stationnaires des équations d'évolution :

$$\begin{aligned} 0 &= \left(\frac{da_i}{dt} \right)_{PO} + \left(\frac{da_i}{dt} \right)_{EM} + \left(\frac{da_i}{dt} \right)_{Rel} & i = 1, \dots, 6 \\ 0 &= \left(\frac{db_j}{dt} \right)_{PO} + \left(\frac{db_j}{dt} \right)_{Rel} & j = 1, \dots, 18 \end{aligned} \quad (2.18)$$

où sont combinées les contributions des processus de pompage optique (PO), des collisions d'échange de métastabilité (EM) et des diverses relaxations (Rel).

2.2.1 Couplage au champ électromagnétique

Contribution du processus de pompage optique

L'action du faisceau laser de pompage optique sur les populations des sous-niveaux comporte :

- l'excitation de la transition A_i-B_j par absorption du laser avec la probabilité de transition par unité de temps $1/\tau_{ij} = \gamma_{p\ ij}$.
- l'émission stimulée qui se traduit par une désexcitation des sous-niveaux B_j sur les sous-niveaux A_i excités par le laser pompe avec la probabilité de transition $1/\tau_{ij}$.
- l'émission spontanée qui se traduit par une désexcitation liée à la durée de vie radiative $1/\Gamma$ de l'état 2^3P .

Pour des raisons de simplification, nous ne considérons pas les effets de réabsorption de la lumière diffusée dans la cellule de pompage optique dans le cadre de nos modèles numériques. Une évaluation de ces effets dans nos conditions expérimentales est présentée dans le paragraphe 6.3.

Sous l'effet du couplage avec le champ électromagnétique et l'excitation d'une ou plusieurs transitions atomiques, les équations d'évolution des populations des six sous-niveaux métastables et des dix-huit sous-niveaux du 2^3P s'écrivent :

$$\left(\frac{da_i}{dt}\right)_{PO} = -\sum_{k=1}^{18} \frac{1}{\tau_{ik}}(a_i - b_k) + \Gamma \sum_{k=1}^{18} T_{ik} b_k \quad i = 1, \dots, 6 \quad (2.19)$$

$$\left(\frac{db_j}{dt}\right)_{PO} = -\Gamma b_j + \sum_{k=1}^6 \frac{1}{\tau_{kj}}(a_k - b_j) \quad j = 1, \dots, 18 \quad (2.20)$$

Probabilité d'absorption par unité de temps

Soit \mathbf{E} le champ électrique du laser utilisé pour le pompage optique de pulsation ω associée à la transition $2^3S_1-2^3P$, de polarisation \mathbf{e}_λ et d'intensité surfacique $I = 2\epsilon_0 c E_0^2$:

$$\mathbf{E} = \mathbf{e}_\lambda E_0 e^{i\omega t} + c.c. \quad (2.21)$$

Pour une transition A_i-B_j couplant un état A_i du niveau 2^3S_1 à un état B_j du niveau 2^3P , la probabilité d'absorption par unité de temps $1/\tau_{ij}$ dans le cadre de l'approximation dipolaire électrique s'écrit [Nac85b] :

$$\frac{1}{\tau_{ij}} = \frac{4\pi\alpha f}{m_e \omega \Gamma'} I \frac{(\Gamma'/2)^2}{(\Gamma'/2)^2 + (\omega - \omega_{ij})^2} T_{ij} \quad (2.22)$$

α étant la constante de structure fine, $f = 0.5391$ la force d'oscillateur associée à la transition $2^3S_1-2^3P$, m_e la masse de l'électron, ω_{ij} et T_{ij} la pulsation et l'élément de la matrice de transition de A_i à B_j et Γ' le taux d'amortissement de la cohérence optique. Aux faibles pressions, Γ' est égal au taux de décroissance radiative Γ de l'état 2^3P :

$$\Gamma = \frac{2\alpha\omega^2\hbar}{3m_e c^2} f = 1.022 \times 10^7 \text{ s}^{-1} \quad (2.23)$$

où c est la vitesse de la lumière, $2\pi\hbar$ la constante de Planck. Aux fortes pressions, Γ' s'écrit :

$$\Gamma' = \Gamma + \Gamma_{coll} \quad (2.24)$$

Γ_{coll} représente un élargissement collisionnel proportionnel à la pression et de l'ordre de 15 MHz/mbar [Blo85]. Par suite de l'agitation thermique, la distribution des vitesses dans le gaz suit une loi de répartition de Boltzmann. Les raies d'absorption s'élargissent par effet Doppler. Il en résulte des Gaussiennes de largeur Δ à $1/e$:

$$\Delta = (\omega_{ij}/2\pi)\sqrt{2k_B T/M_{at}c^2} = 1.19 \text{ GHz à } 300 \text{ K} \quad (2.25)$$

où k_B est la constante de Boltzmann, T la température du gaz, M_{at} la masse de l'atome; la largeur à mi-hauteur du profil Gaussien (FWHM), donnée par $2\Delta\sqrt{\ln 2}$ vaut 1.98 GHz à 300 K.

L'interaction entre les atomes et le laser revêt à la fois un caractère spatial et spectral. Dans nos modélisations du pompage optique aux pressions élevées, nous adoptons l'approche suivante pour tenir compte de la distribution spatiale des atomes et de la distribution de leurs vitesses.

Pour simplifier la situation d'un point de vue spatial, nous considérons un laser pompe de puissance uniforme. En fait, le profil de distribution transverse d'un laser n'est pas généralement uniforme et dépend de la structure des modes transverses. Le profil de distribution spatiale du laser que nous avons utilisé (paragraphe 3.4.2) est gaussien; l'approximation spatiale revient donc à caractériser la distribution par un créneau. Expérimentalement, ceci peut être obtenu par une apodisation du faisceau *e.g.* en utilisant un diaphragme pour ne sélectionner que la fraction centrale du faisceau, d'intensité assez homogène. Spatialement, les atomes sont donc séparés en deux catégories : dans le faisceau et hors du faisceau laser. Une telle séparation en deux compartiments devient difficile à basse pression à cause d'une diffusion rapide des atomes qui s'oppose à une telle localisation (voir paragraphe 6.1.4).

En outre, l'interaction atome-laser dépend de l'écart à résonance et présente donc une grande dispersion des probabilités d'absorption. Un modèle exact du pompage optique devrait prendre en considération une distribution continue des

probabilités de transition dépendant de la distribution thermique des vitesses atomiques et de la distribution spectrale du laser *etc.* pour tous les atomes inclus dans le faisceau laser. Dans la référence [Nac85b], les auteurs considèrent deux groupes d'atomes métastables à l'intérieur du faisceau : une fraction des atomes X_S est en résonance avec le laser, l'autre fraction $(1 - X_S)$ est hors résonance. Les probabilités d'absorption sont supposées uniformes à l'intérieur de chaque groupe. Les deux familles sont couplées par les collisions de changement de vitesse, à la fois les collisions d'échange de métastabilité et des collisions élastiques. À forte pression, ces collisions sont très fréquentes ; le couplage entre les différentes classes de vitesse devient très efficace (paragraphe 2.2.2). Dans ce cas, il apparaît naturel de décrire tous les atomes avec une même probabilité d'absorption par unité de temps calculée en moyennant sur la distribution Doppler. En utilisant les termes de la référence [Nac85b], ceci correspond à prendre la fraction X_S d'atomes métastables effectivement pompés égale à 1.

L'effet Doppler introduit un shift de $\omega_{ij}v/c$ pour les fréquences atomiques dans l'Eq.2.22. En moyennant sur la distribution des vitesses, la probabilité de transition d'après l'Eq.2.22 s'écrit :

$$\frac{1}{\tau_{ij}} = \frac{4\pi\alpha f}{m_e\omega\Gamma'} \frac{T_{ij}I}{\bar{v}\sqrt{\pi}} \int_{-\infty}^{+\infty} \frac{(\Gamma'/2)^2 e^{-(v/\bar{v})^2} dv}{(\Gamma'/2)^2 + (\omega - \omega_{ij} - \omega_{ij}v/c)^2} \quad (2.26)$$

où la vitesse moyenne \bar{v} est :

$$\bar{v} = 2\pi c\Delta/\omega_{ij} = \sqrt{2k_B T/M_{at}} \quad (2.27)$$

À 300 K,

$$\bar{v} = 1.289 \times 10^3 \text{ m s}^{-1} . \quad (2.28)$$

Nous attirons l'attention du lecteur que nous conservons pour le taux moyen d'absorption (Eq.2.26) la même notation que celle de l'Eq.2.22.

Nous définissons :

$$\gamma_p \equiv \frac{\sqrt{\pi}\alpha f}{m_e\omega\Delta} I \quad (2.29)$$

avec

$$\frac{\sqrt{\pi}\alpha f}{m_e\omega\Delta} = 3.697 \times 10^3 \text{ s}^{-1}\text{m}^2/\text{W} . \quad (2.30)$$

Pour des taux d'amortissement de la cohérence très faibles par rapport à la largeur Doppler ($\Gamma'/2 \ll 2\pi\Delta$) *i.e.* pour des pressions d'hélium-3 $\ll 1000$ mbar, l'Eq.2.26 donne :

$$\gamma_{p\ ij} \equiv \frac{1}{\tau_{ij}} \simeq \gamma_p T_{ij} e^{-((\omega - \omega_{ij})/2\pi\Delta)^2} \quad (2.31)$$

Pour une intensité laser donnée, le taux de pompage $\gamma_{p\ ij}$ est donc proportionnel à l'élément de matrice de transition T_{ij} et étant donné une certaine raie

atomique, le taux de pompage diminue au fur et à mesure que le désaccord des fréquences augmente.

Nous écrivons la saturation optique de la transition en comparant γ_p au taux Γ de décroissance radiative du niveau 2^3P . L'intensité de saturation vaut :

$$I_{sat} = 2.764 \times 10^3 \text{ W/m}^2 . \quad (2.32)$$

Dans nos conditions expérimentales, l'intensité laser maximale utilisée et en tenant compte d'un aller-retour dans la cellule de pompage (paragraphe 3.4.2) vaut :

$$I = 2 \times 1.25 \times 10^3 \text{ W/m}^2 . \quad (2.33)$$

Ce qui correspond à $\gamma_p/\Gamma = 0.9$. Les processus d'émission induite sont importants pour des intensités laser du même ordre que l'intensité de saturation.

2.2.2 Collisions d'échange de métastabilité

Rappels sur l'échange de métastabilité

L'échange de métastabilité est un processus de collision à deux corps entre un atome métastable polarisé nucléairement et un atome fondamental, au cours duquel un échange de l'excitation électronique est effectué. Ces collisions, assez brèves, n'affectent pas les spins électroniques et nucléaires. De plus, elles ne sont pas assez fréquentes pour qu'une cohérence entre sous-niveaux hyperfins différents se crée [Par66]. Elles peuvent être représentées par :



Étant donné la section efficace d'échange de métastabilité σ_e , les probabilités d'échange par unité de temps pour un atome dans l'état fondamental 1^1S_0 et un atome dans l'état métastable 2^3S_1 sont respectivement données par :

$$\Gamma_e = \frac{1}{T_e} = n_m \overline{\sigma_e v} \quad (2.35)$$

et

$$\gamma_e = \frac{1}{\tau_e} = N_g \overline{\sigma_e v} \quad (2.36)$$

où n_m est la densité d'atomes métastables, N_g est la densité d'atomes dans l'état fondamental, v est la vitesse relative des atomes entrant en collision. $\overline{\sigma_e v}$ représente une moyenne sur la distribution thermique des vitesses. Γ_e est proportionnel à la densité d'atomes métastables, alors que γ_e est proportionnel à la pression du gaz ; d'après la référence [Dup71], γ_e vaut $3.75 \times 10^6 \text{ s}^{-1}/\text{mbar}$ à la température ambiante. Pour décrire les propriétés statistiques du mélange d'atomes d'hélium-3

dans l'état fondamental et dans l'état métastable sous l'effet de ces collisions, nous utilisons le formalisme de l'opérateur densité, comme dans les références [Dup73], [Nac85b], [Cou02], en écrivant :

$$\begin{aligned}\rho_g &= \frac{1+M}{2}|+\rangle\langle+| + \frac{1-M}{2}|-\rangle\langle-| \\ \rho_m &= \sum_{i=1}^6 a_i |A_i\rangle\langle A_i|\end{aligned}\tag{2.37}$$

a_i étant les populations relatives des six sous-niveaux métastables, ρ_g et ρ_m les matrices densité des atomes fondamentaux et métastables respectivement. Nous pouvons écrire l'effet de l'échange de métastabilité (Eq.2.34) sur ces matrices :

$$\begin{aligned}\frac{d\rho_g}{dt} &= \Gamma_e(-\rho_g + Tr_e\rho_m) \\ \frac{d\rho_m}{dt} &= \gamma_e(-\rho_m + \sum_i \Pi_i(\rho_g \otimes Tr_n\rho_m)\Pi_i)\end{aligned}\tag{2.38}$$

où Tr_e et Tr_n sont les opérateurs de trace respectivement sur les spins électronique et nucléaire, et $\Pi = |A_i\rangle\langle A_i|$ est le projecteur sur les niveaux hyperfins de l'état 2^3S_1 .

Contribution du processus d'échange de métastabilité

À partir des Eqs.2.38, nous pouvons écrire les contributions aux équations d'évolution des populations relatives a_i des sous-niveaux métastables A_i et celle de la polarisation nucléaire M traduisant l'effet des collisions d'échange de métastabilité. Nous effectuons le calcul dans la base découplée $|m_J, m_I\rangle$ pour les variables électroniques et nucléaires et nous reprojectons ensuite sur les états propres. Nous obtenons alors pour un sous-niveau métastable de population relative a_i :

$$\left(\frac{da_i}{dt}\right)_{EM} = \gamma_e(-a_i + \sum_{k=1}^6 (E_{ik} + MF_{ik})a_k)\tag{2.39}$$

E, F sont les matrices décrivant les collisions d'échange de métastabilité pour les atomes dans le niveau métastable et dépendant du champ magnétique; leurs éléments sont détaillés dans la référence [Nac85b] en faible champ magnétique et dans l'appendice de la référence [Cou02] pour un champ magnétique quelconque. Nous reportons d'après [Cou02] leurs valeurs pour des champs magnétiques B compris entre 0.1619 Tesla et 4.716 Tesla dans les tables 2.3 et 2.4, avec :

$$\begin{aligned}s_{\pm} &= \sin^2 \theta_{\pm} \\ c_{\pm} &= \cos^2 \theta_{\pm} = 1 - s_{\pm}\end{aligned}\tag{2.40}$$

Évolution de la polarisation

De plus, nous obtenons d'après les Eqs.2.38 :

$$\left(\frac{dM}{dt}\right)_{EM} = \Gamma_e \left(-M + \sum_{k=1}^6 L_k a_k\right) \quad (2.41)$$

avec $\sum_k L_k a_k$ la polarisation nucléaire dans le niveau métastable. Cette polarisation joue dans la suite un rôle important et nous la notons M^* :

$$M^* = \sum_{k=1}^6 L_k a_k . \quad (2.42)$$

L est la matrice qui décrit les collisions d'échange de métastabilité pour les atomes dans le niveau fondamental.

Étant donné ses éléments pour un champ magnétique $0.1619 < B < 4.716$ Tesla (table 2.5), M^* s'écrit :

$$M^* = -a_1 + (1 - 2s_-)(a_2 - a_4) + (1 - 2s_+)(a_3 - a_6) + a_5 \quad (2.43)$$

alors que dans un champ magnétique faible (de l'ordre du mTesla), M^* s'écrit :

$$M_{B \sim mTesla}^* = -a_1 - \frac{1}{3}(a_2 - a_5) + \frac{1}{3}(a_3 - a_6) + a_4 . \quad (2.44)$$

En faible champ magnétique, le couplage hyperfin se manifeste par des angles de mélange élevés (Eq.2.12). À 1.5 Tesla, le découplage hyperfin est assez avancé (Eq.2.15). Ce changement de comportement va se traduire, comme décrit dans le paragraphe 2.3, par un ralentissement de la dynamique de construction de la polarisation nucléaire.

Revenons aux détails de l'Eq.2.41. Cette dernière montre que les collisions d'échange de métastabilité couplent la polarisation nucléaire M^* de l'état 2^3S_1 obtenue par pompage optique laser à la polarisation nucléaire M de l'état fondamental 1^1S_0 . Les Eqs.2.39 décrivent l'évolution des a_i et montrent que pour les atomes métastables, ces collisions transfèrent la population d'un sous-niveau à un autre. Elles sont non linéaires sauf si nous considérons la polarisation M du niveau fondamental comme fixée. C'est bien le cas lorsqu'elle évolue à des échelles de temps $\ll T_e$.

Sous le seul effet des collisions d'échange de métastabilité et de la même façon que lors de collisions d'échange de spin entre des alcalins différents (comme discuté dans la référence [And59]), la polarisation du fondamental M dicte aux populations de l'état métastable une distribution en température de spin ; ceci impose une dépendance exponentielle des populations relatives avec m_F . En effet, en

	a_1	a_2	a_3	a_4	a_5	a_6
a_1	1	c_-	0	s_-	0	0
a_2	c_-	$c_-^2 + s_-^2$	c_+s_-	$2c_-s_-$	0	s_+s_-
a_3	0	c_+s_-	$c_+^2 + s_+^2$	c_+c_-	s_+	$2c_+s_+$
a_4	s_-	$2c_-s_-$	c_+c_-	$c_-^2 + s_-^2$	0	c_-s_+
a_5	0	0	s_+	0	1	c_+
a_6	0	s_+s_-	$2c_+s_+$	c_-s_+	c_+	$c_+^2 + s_+^2$

TAB. 2.3 – Éléments de la matrice $2E$ pour des champs magnétiques B compris entre 0.1619 et 4.716 Tesla (Eq.2.39).

	a_1	a_2	a_3	a_4	a_5	a_6
a_1	-1	$-c_-$	0	$-s_-$	0	0
a_2	c_-	$c_-^2 - s_-^2$	$-c_+s_-$	0	0	$-s_+s_-$
a_3	0	c_+s_-	$c_+^2 - s_+^2$	c_+c_-	$-s_+$	0
a_4	s_-	0	$-c_+c_-$	$s_-^2 - c_-^2$	0	$-c_-s_+$
a_5	0	0	s_+	0	1	c_+
a_6	0	s_+s_-	0	c_-s_+	$-c_+$	$s_+^2 - c_+^2$

TAB. 2.4 – Éléments de la matrice $2F$ pour des champs magnétiques B compris entre 0.1619 et 4.716 Tesla (Eq.2.39).

a_k	a_1	a_2	a_3	a_4	a_5	a_6
L_k	-1	$c_- - s_-$	$c_+ - s_+$	$s_- - c_-$	1	$s_+ - c_+$

TAB. 2.5 – Éléments de la matrice L pour des champs magnétiques B compris entre 0.1619 et 4.716 Tesla (Eq.2.42).

définissant la température de spin $1/\beta$ par :

$$e^\beta = \frac{N_\uparrow}{N_\downarrow} = \frac{1+M}{1-M} \quad (2.45)$$

où N_\uparrow et N_\downarrow sont les populations des deux sous-niveaux fondamentaux de m_I respectifs $1/2$ et $-1/2$, nous pouvons démontrer que :

$$a_i = \frac{e^{\beta m_F}}{e^{3\beta/2} + 2e^{\beta/2} + 2e^{-\beta/2} + e^{-3\beta/2}} \quad i = 1, \dots, 6 \quad (2.46)$$

est la solution stationnaire des Eqs.2.38.

Les Eqs.2.39, 2.41, 2.45 et 2.46 montrent donc que la création de l'orientation nucléaire dans le niveau fondamental suite au pompage optique hyperfin dans le niveau métastable repose sur les collisions d'échange de métastabilité qui couplent le niveau métastable 2^3S_1 au niveau fondamental 1^1S_0 . Une modélisation réaliste du mécanisme de pompage optique par échange de métastabilité permet d'une part de comprendre la compétition et/ou la collaboration entre les divers processus entrant en jeu dans le pompage optique aux fortes pressions et en champ magnétique intense. D'autre part, elle permet de comprendre dans quelle mesure et dans quelles conditions un diagnostic des populations du métastable permet de déduire des informations sur la polarisation nucléaire du niveau fondamental (chapitre 4).

2.2.3 Processus de relaxation

Relaxation dans le niveau métastable 2^3S_1

Les atomes métastables sont affectés par divers types de collisions en plus de l'échange de métastabilité. Des collisions avec des espèces présentes dans le plasma peuvent porter un atome d'un sous-niveau A_l donné à un sous-niveau A_m différent. La façon la plus simple pour tenir compte de tous ces processus à l'aide d'un seul paramètre phénoménologique, le taux de relaxation γ_S^{rel} , est de les décrire en supposant que chaque population a_i tend sous l'effet de cette relaxation vers une valeur moyenne telle que :

$$\left(\frac{da_i}{dt}\right)_{Rel} = -\gamma_S^{rel} \left(a_i - \frac{1}{6}\right) \quad i = 1, \dots, 6 \quad (2.47)$$

Relaxation dans le niveau excité 2^3P

De la même façon, pendant leur durée de vie radiative les atomes dans le 2^3P peuvent être portés d'un sous-niveau B_l à un sous-niveau B_n ($l, n = 1, \dots, 18$) par des collisions diverses, à un taux d'autant plus élevé que la pression du gaz est forte. Si elles sont suffisamment fréquentes, ces collisions égalisent les populations

des 18 sous-niveaux de l'état excité 2^3P au cours de sa durée de vie radiative. La façon la plus simple de les prendre en compte est d'introduire un taux moyen de relaxation γ_P^{rel} de telle sorte que :

$$\left(\frac{db_j}{dt}\right)_{Rel} = -\gamma_P^{rel} \left(b_j - \frac{\sum_{n=1,18} b_n}{18} \right) \quad j = 1, \dots, 18 \quad (2.48)$$

Des études de l'effet de ces collisions dépolarisantes dans le niveau 2^3P conduisent à des taux de relaxation de l'ordre de 10^7 s^{-1} dans le régime des pressions faibles (à 1 mbar) où les collisions inter-atomiques sont peu fréquentes [Sch67], [Lan68]. γ_P^{rel} est alors comparable au taux de décroissance radiative Γ du 2^3P (Eq.2.23). Par contre dans le régime des hautes pressions, γ_P^{rel} (de l'ordre de 10^9 s^{-1} à 50 mbar) est très grand devant Γ et une redistribution totale des atomes dans l'état 2^3P peut être supposée. Des arguments similaires d'augmentation de taux de relaxation dans le 2^3P avec la pression sont utilisés dans la référence [Nac85b] pour une comparaison systématique entre des résultats expérimentaux et numériques de pompage optique, et une valeur similaire de γ_P^{rel} a été empiriquement déduite ($\gamma_P^{rel} \sim \Gamma$ à 0.4 mbar).

Relaxation dans le niveau fondamental 1^1S_0

L'orientation nucléaire de l'état fondamental de l'hélium-3 peut être détruite par divers types de processus. Nous supposons qu'ils se traduisent par un taux global de relaxation de la polarisation Γ_1 . Ce taux de relaxation résulte de la relaxation en absence du plasma entretenu par la décharge radiofréquence, à laquelle s'ajoute la relaxation due au plasma.

i- En absence de plasma entretenu par la décharge radiofréquence :

Les interactions nucléaires dipôle-dipôle dans le niveau fondamental sont une source de relaxation de la polarisation. Plusieurs auteurs ont étudié ce processus [Shi71], [Bar74], [New93]. Si nous considérons une des plus récentes références [New93], nous avons à la température ambiante un taux de relaxation $\Gamma_{1 dd}$ proportionnel à la pression P :

$$\Gamma_{1 dd} \text{ (s}^{-1}\text{)} = \frac{P(\text{mbar})}{2.94 \times 10^9} \quad (2.49)$$

Comme ce processus de relaxation conduit à des temps de relaxation de plusieurs années dans nos conditions expérimentales, il est totalement négligeable.

Des impuretés paramagnétiques des parois des cellules en Pyrex peuvent créer des inhomogénéités locales de champ magnétique pouvant basculer le spin

nucléaire et perturber la polarisation M . Nous traduisons ces processus par un taux de relaxation que nous notons $\Gamma_{1\ paroi}$. Suivant la température du gaz, l'interaction entre les atomes d'hélium-3 et la surface de la paroi s'explique en termes d'adsorption (régime des basses températures) ou d'absorption (régime des températures élevées) du gaz par la paroi [Fit67], [Fit69], [Jac01], [Jac03]. De surcroît, les temps de relaxation de la polarisation dus à ces processus dépendent du champ magnétique statique. À 300 K, et dans un champ magnétique de l'ordre de 1 mTesla, les temps de relaxation typiques dans des cellules de Pyrex de diamètre 5 cm varient entre une et plusieurs heures [Fit69], [Hei95]. Des études en fonction du champ magnétique ont montré un rallongement du temps de relaxation $1/\Gamma_{1\ paroi}$ de près d'un facteur 2 en augmentant le champ magnétique de 1 mTesla à 22.5 mTesla [Fit69]. Théoriquement, un modèle élaboré par Jacob *et al.* [Jac03] permet de déterminer les temps de relaxation due aux collisions atome-paroi étant donné la surface de la paroi et le volume de la cellule à température donnée. Ce calcul prévoit un rallongement du temps de relaxation $1/\Gamma_{1\ paroi}$ en augmentant le champ magnétique. Dans nos expériences à 1.5 Tesla, nous n'avons pas mesuré la seule contribution des impuretés paramagnétiques des parois des cellules $\Gamma_{1\ paroi}$. Ceci étant, leurs effets sont inclus dans nos mesures de la relaxation due au plasma entretenu dans la cellule $\Gamma_{1\ dech}$ (voir Eq.2.53).

Une autre forme de relaxation magnétique a son origine dans la présence d'inhomogénéités à grande échelle du champ magnétique telles que les gradients linéaires sur la cellule. Couplées au mouvement diffusif des atomes du gaz, ces inhomogénéités entraînent une relaxation avec un taux $\Gamma_{1\ magn}$ calculé et mesuré dans [Bar74]. Le calcul à base de théorie des perturbations au deuxième ordre (dépendant du temps) permet de trouver l'équation d'évolution de la matrice densité des atomes et par la suite le taux de relaxation longitudinale de M dans le cas où le mouvement des atomes est suffisamment rapide (conditions de rétrécissement par le mouvement). Pour un champ magnétique total \mathbf{B} où les inhomogénéités varient linéairement sur l'axe de la cellule avec une symétrie cylindrique autour de B_0 , le champ magnétique total s'écrit :

$$\mathbf{B} = -Gxi - Gyj + (B_0 + 2Gz)\mathbf{k} \quad (2.50)$$

avec \mathbf{i} , \mathbf{j} et \mathbf{k} trois vecteurs unitaires, G le gradient longitudinal tel que :

$$\Delta B = 2GL \quad (2.51)$$

L est la longueur de la cellule cylindrique, $\Delta B/B_0$ est l'inhomogénéité relative du champ magnétique sur la cellule. $\Gamma_{1\ magn}$ s'écrit alors [Bar74], [Nac79] :

$$\Gamma_{1\ magn} = K \frac{\tau_{11}\gamma_0^2(\Delta B)^2}{(1 + \tau_{11}^2\gamma_0^2 B_0^2)(1 + \tau_c^2\gamma_0^2 B_0^2)} \quad (2.52)$$

γ_0 est le rapport gyromagnétique nucléaire de l'hélium-3 ($2\pi \times 32.43601 \times 10^6$ rad.s⁻¹/T). τ_{11} est la constante de diffusion du mode propre de diffusion le plus

bas. τ_{11} est proportionnel à la pression du gaz et vaut 0.75×10^{-3} s/mbar dans des cellules cylindriques de dimensions $5 \text{ cm} \times 5 \text{ cm}$ [Bar74]. τ_c est le temps moyen séparant deux collisions atomiques, inversement proportionnel à la pression. D’après des mesures de coefficient de diffusion [Bid03], τ_c est de l’ordre de 2.4×10^{-7} s à 1 mbar, compatible avec des mesures antérieures [Sch65], [Gam65]. K est une constante dépendant de la géométrie et des dimensions de la cellule. Lorsque le champ magnétique n’est pas très faible *i.e.* pour $\gamma_0 B_0 \tau_{11} \gg 1$, l’Eq.2.52 donne la formule proposée par Schearer [Sch65], formule confrontée partiellement à des résultats expérimentaux, même si elle dérive d’une approche complètement différente et faisant appel aux résultats de la théorie brownienne du mouvement. Dans nos expériences de pompage optique à 1.5 Tesla au centre de l’imageur, les inhomogénéités magnétiques sont extrêmement faibles (paragraphe 3.1); évaluées à près de 2 ppm au centre de l’imageur, elles conduiraient à des temps de relaxation de plusieurs milliers d’années dans nos cellules à 50 mbar. Par contre, dans d’autres expériences effectuées le long de l’axe horizontal de l’imageur, là où le champ magnétique $\mathbf{B} < 1.5$ Tesla varie rapidement, la relaxation due aux inhomogénéités du champ magnétique s’avère être un facteur limitant pour le processus de pompage optique (paragraphe 7.2).

ii- En présence du plasma entretenu par la décharge radiofréquence :

La cascade radiative qui peuple l’état métastable contribue à la relaxation de la polarisation suite aux collisions des atomes fondamentaux avec les électrons ou les espèces ioniques présentes dans le plasma ; les effets de ses processus sont traduits par un taux de relaxation noté $\Gamma'_{1\ dech}$.

Dans nos expériences, nous avons procédé à une mesure systématique des processus de relaxation en présence de plasma. Ces mesures englobent également les contributions de la relaxation vers les parois de la cellule et de la relaxation due aux inhomogénéités du champ ; les taux de relaxation “globale” sont notés $\Gamma_{1\ dech} = 1/T_{1\ dech}$ et s’écrivent :

$$\Gamma_{1\ dech} = \Gamma'_{1\ dech} + \Gamma_{1\ dd} + \Gamma_{1\ paroi} + \Gamma_{1\ magn} \quad (2.53)$$

Peuvent s’ajouter à ces processus de relaxation de la polarisation en présence de plasma d’autres processus qui interviendraient lors du pompage optique, en présence même du laser pompe. Nous traduisons leurs effets par un taux global que nous notons $\Gamma_{1\ laser}$. Un des buts de notre étude de pompage optique en fort champ magnétique sera de mettre en évidence et de déterminer expérimentalement les valeurs des $\Gamma_{1\ laser}$ afin de caractériser les processus dont ils dépendent.

2.3 Modèle à 6 populations

Le modèle que nous développons dans ce paragraphe est un modèle qui tient compte des divers processus du pompage optique de façon élémentaire. Il va nous permettre de discuter en utilisant des termes simples l'aspect dynamique de la construction de la polarisation par pompage optique à 1.5 Tesla.

Pompage par dépopulation

Formalisons le processus de pompage optique par dépopulation dont nous avons parlé au paragraphe 2.1.3. Nous nous plaçons dans le contexte des pressions élevées où une forte redistribution collisionnelle dans l'état excité 2^3P au taux γ_P^{rel} peut être supposée (paragraphe 2.2.3) et nous procédons au pompage optique dans ces conditions : un laser pompe, suffisamment intense et excitant un sous-niveau de $m_F > 0$, finit par dépeupler ce sous-niveau et par transférer la population dans les autres sous-niveaux. Le bilan net de transfert de moment angulaire se traduit alors par une polarisation nucléaire $M < 0$.

Dans ce contexte, le processus de création d'une différence de population dans les six sous-niveaux métastables de l'hélium-3 peut être résumé par la séquence suivante : excitation de la transition $2^3S_1-2^3P$ avec un laser, redistribution collisionnelle totale dans l'état 2^3P et désexcitation par émissions induite et spontanée. Ce type de pompage connu par pompage par dépopulation a été analysé pour la première fois par Dehmelt [Deh56].

Équation d'évolution de la polarisation et ralentissement de la dynamique

Nous considérons un gaz d'hélium-3 à forte pression où, suite au pompage optique, par exemple en accordant le laser sur la transition f_{4m} , tous les atomes sont portés dans la paire (A_5, A_6) comme représenté schématiquement dans la Fig.2.6. Ceci est *a priori* envisageable. En effet, comme les collisions d'échange de métastabilité n'affectent pas les spins électroniques et étant donné l'important découplage hyperfin à 1.5 Tesla, l'échange de métastabilité va essentiellement coupler les sous-niveaux à l'intérieur de chaque paire de sous-niveaux (A_1, A_2) , (A_3, A_4) et (A_5, A_6) . Ce couplage des sous-niveaux à l'intérieur d'une même paire l'emporte sur d'éventuels processus de relaxation comme illustré plus loin dans le mémoire dans la Fig.4.4. Par la suite, un pompage laser, avec une puissance telle que le taux de pompage est comparable au taux d'échange de métastabilité dans le niveau métastable γ_e , peut efficacement transférer la population dans la paire de sous-niveaux (A_5, A_6) . De plus, comme les sous-niveaux A_5 et A_6 ne sont pas excités par le laser pompe, nous pouvons supposer que leurs populations relatives sont dictées par l'état fondamental et suivent une distribution en température de spin. Les populations relatives des sous-niveaux A_5 et A_6 sont donc :

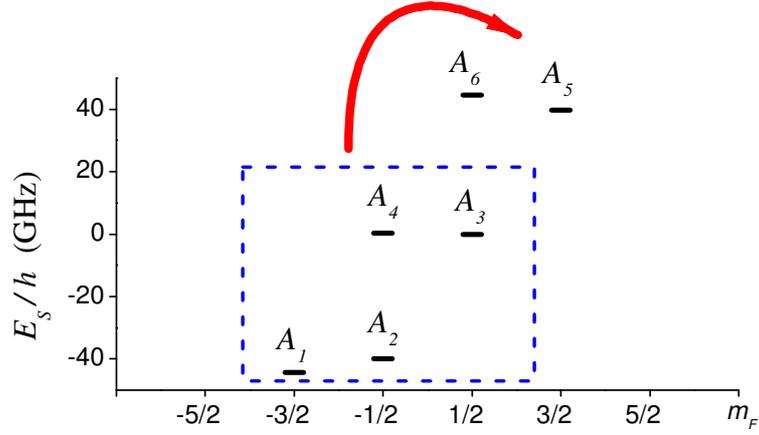


FIG. 2.6 – Schéma représentatif du modèle simple de pompage optique à 1.5 Tesla, permettant de discuter les échelles de temps relatives à la construction de la polarisation M par pompage optique laser. Le modèle suppose une excitation des sous-niveaux A_1 à A_4 et une distribution en température de spin des populations de la paire de sous-niveaux (A_5, A_6).

$$\begin{aligned} a_5 &= \frac{1+M}{2} \\ a_6 &= \frac{1-M}{2} \end{aligned} \quad (2.54)$$

La polarisation nucléaire dans le niveau métastable est alors :

$$M^* = M + (1-M)s_+ \quad (2.55)$$

Ce qui permet d'écrire l'équation de l'évolution de M (d'après les Eqs.2.41 et 2.42) :

$$\frac{dM}{dt} = \Gamma_e \{s_+(1-M)\} - \Gamma_1 M \quad (2.56)$$

Γ_e étant le taux des collisions d'échange de métastabilité pour un atome dans l'état fondamental, Γ_1 le taux de relaxation longitudinale de la polarisation nucléaire dans le niveau fondamental. La résolution de l'Eq.2.56 donne :

$$M(t) = M_{stat}(1 - e^{-t/t_b}) \quad (2.57)$$

où M_{stat} est la polarisation nucléaire atteinte à l'état stationnaire :

$$M_{stat} = \left(1 + \frac{\Gamma_1}{s_+\Gamma_e}\right)^{-1} \quad (2.58)$$

et t_b est le temps de construction de M :

$$t_b = \frac{M_{stat}}{\Gamma_e s_+} \quad (2.59)$$

Nous déduisons de l'expression de t_b une dépendance vis à vis de l'angle θ_+ dans le sens d'un ralentissement de la dynamique de construction de M au fur et à mesure que l'angle de mélange se réduit, donc au fur et à mesure que le champ magnétique augmente. À 1.5 Tesla, la valeur $s_+ \sim 0.0051$ montrerait un ralentissement de la dynamique de pompage de deux ordres de grandeur par rapport aux conditions standard *i.e.* en champ magnétique de l'ordre du mTesla où $s_+ \sim 0.3333$. En pratique, ce modèle n'est pas valide en champ magnétique faible et seul un ralentissement d'un ordre de grandeur est observé dans nos expériences.

Validité du modèle à 6 populations

Comme nous pouvions nous y attendre, les résultats de ce modèle sont indépendants de la puissance laser puisqu'un dépeuplement complet des sous-niveaux excités par le laser pompe est supposé. Bien entendu, ce modèle ne constitue qu'une approche élémentaire pour comprendre simplement l'effet d'un champ magnétique sur la dynamique du pompage optique. Son domaine de validité et son exactitude sont évalués par comparaison avec les résultats du modèle à 7 populations décrit dans le paragraphe 2.4.

2.4 Modèle à 7 populations

Ce travail est le développement du modèle développé dans [Nac85a], [Nac85b]; il est adapté à la structure atomique de l'hélium-3 à 1.5 Tesla et tient compte explicitement des effets d'émission induite. Ce modèle prend en considération trois familles d'états atomiques 1^1S_0 , 2^3S_1 et 2^3P . Avec les notations du paragraphe 2.2, les Eqs.2.18 donnant les populations a_i et b_j en régime stationnaire peuvent s'écrire :

$$\begin{aligned}
0 &= \gamma_e \left\{ -a_i + \sum_{n=1}^6 (E_{in} + MF_{in}) a_n \right\} - \sum_{n=1}^{18} \gamma_{p\ in} (a_i - b_n) \\
&\quad + \Gamma \sum_{n=1}^{18} T_{in} b_n - \gamma_S^{rel} \left(a_i - \frac{1}{6} \right) \\
0 &= -\Gamma b_j + \sum_{i=1}^6 \gamma_{p\ ij} (a_i - b_j) - \gamma_P^{rel} \left(b_j - \frac{1}{18} \sum_{n=1}^{18} b_n \right)
\end{aligned} \tag{2.60}$$

avec $i = 1, \dots, 6$ et $j = 1, \dots, 18$.

Par ailleurs, dans le niveau fondamental, l'équation d'évolution de la polarisation nucléaire s'écrit :

$$\frac{dM}{dt} = \Gamma_e(M^* - M) - \Gamma_1 M \quad . \quad (2.61)$$

La résolution du système d'équations couplées Eqs.2.60 et 2.61 repose sur l'existence de constantes de temps très différentes pour l'évolution des processus pris en compte dans la modélisation. En fait, les populations de l'état métastable a_i sont des variables rapides qui évoluent essentiellement sous l'effet des collisions d'échange de métastabilité (échelle de temps caractéristique de l'ordre de $1/\gamma_e \sim 10^{-6}$ s). De même les populations b_j du niveau 2^3P évoluent essentiellement sous l'effet de γ_P^{rel} et Γ également à des échelles de temps très courtes. De son côté, la polarisation nucléaire dans le fondamental évolue avec des échelles de temps plus longues de l'ordre de la seconde ($1/\Gamma_e$).

2.4.1 Limite des fortes pressions

Nous nous plaçons dans le contexte d'une forte redistribution collisionnelle dans l'état excité 2^3P , contexte réaliste pour les pressions d'hélium-3 élevées. Nous supposons donc que le taux de relaxation dans le niveau 2^3P est supérieur à tous les autres taux caractéristiques des processus entrant en jeu dans le pompage optique par échange de métastabilité : $\gamma_P^{rel} \gg \Gamma, \gamma_e$ et γ_p . Le système à 24 populations peut se réduire, comme détaillé ci-après, à 7 populations.

Nous définissons b comme la population totale des atomes dans le niveau 2^3P :

$$b = \sum_{n=1}^{18} b_n \quad (2.62)$$

Comme les collisions dans le 2^3P tendent à égaliser les populations des dix-huit sous-niveaux, nous pouvons écrire :

$$b_j = \frac{b}{18} \quad (2.63)$$

Dans ce cas, la population commune des sous-niveaux B_j vérifie d'après l'Eq.2.60 :

$$0 = -\Gamma \frac{b}{18} + \sum_{i=1}^6 \gamma_{p\ ij} \left(a_i - \frac{b}{18} \right) \quad (2.64)$$

En sommant les contributions des dix-huit sous-niveaux et en notant :

$$\sum_{j=1,18} \gamma_{p\ ij} = \gamma_{p\ i} \quad (2.65)$$

le taux de pompage total au départ du sous-niveau i , nous obtenons :

$$0 = -\Gamma b + \sum_{i=1,6} \gamma_{p i} \left(a_i - \frac{b}{18} \right) \quad (2.66)$$

Ce qui donne :

$$b = \frac{18 \sum \gamma_{p i} a_i}{18\Gamma + \sum \gamma_{p i}} \quad (2.67)$$

$$\left(\frac{da_j}{dt} \right)_{PO} = -\gamma_{p j} a_j + (3\Gamma + \gamma_{p j}) \frac{\sum \gamma_{p i}}{18\Gamma + \sum \gamma_{p i}} a_i$$

Dans le cas particulier de l'excitation d'une seule transition atomique A_i-B_j pour le pompage optique, les Eqs.2.67 peuvent être simplifiées. En les réécrivant, nous obtenons :

$$b = \frac{\tilde{\gamma}_p}{\Gamma} a_i \quad (2.68)$$

$$\left(\frac{da_j}{dt} \right)_{PO} = \tilde{\gamma}_p \left(-\delta_{ji} + \frac{1}{6} \right) a_i$$

$\tilde{\gamma}_p$ est un taux de pompage effectif :

$$\tilde{\gamma}_p = \frac{18\Gamma \gamma_{p i}}{18\Gamma + \gamma_{p i}} \quad (2.69)$$

avec $\delta_{ji} = 1$ (respectivement $= 0$) si le sous-niveau métastable A_i est (respectivement n'est pas) excité par le laser pompe. Les Eqs.2.68 et 2.69 constituent une généralisation du modèle de pompage aux fortes pressions et faibles puissances laser présenté dans [Cou02].

Par contre, quand plusieurs transitions sont excitées à la fois, *e.g.* par pompage à 1.5 Tesla sur l'une des raies f_{4m} , f_{2m} , f_{4p} ou f_{2p} , les Eqs.2.67 ne peuvent pas être écrites de façon simplifiée et nous ne pouvons pas traduire les effets de l'émission induite par un paramètre effectif. La résolution numérique du système permet alors de mettre en évidence la collaboration et/ou la compétition des divers taux de pompage entrant en jeu. Les taux de pompage $\gamma_{p i}$ sont évalués numériquement en utilisant la formule de l'Eq.2.31 établie pour tenir compte de l'effet Doppler. En pratique, pour la résolution du système d'équations, nous cherchons pour une polarisation M donnée les états stationnaires des populations des sous-niveaux à partir desquelles on détermine M^* et donc dM/dt . Nous utilisons pour cela un code numérique qui consiste à trouver le noyau de la matrice 6×6 ; il utilise l'algorithme svdcmp (singular value decomposition) de la référence [Pre92]. Nous pouvons donc déterminer la dynamique du pompage optique, les polarisations atteintes en régime stationnaire et l'absorption de la lumière laser de pompage.

Dans les Figs.2.7 et 2.8, nous présentons la variation du terme source ($M^* - M$) de l'Eq.2.61 en fonction de $\tilde{\gamma}_p/\gamma_e$ et γ_p/γ_e (Eq.2.29) respectivement, à 8 mbar et 32 mbar. Dans nos conditions expérimentales avec l'intensité laser maximale (Eq.2.33), $\gamma_p/\gamma_e = 0.304$ à 8 mbar, 0.076 à 32 mbar et 0.036 à 67 mbar.

Le premier graphe correspond à l'excitation d'une seule transition, pompage que nous qualifions de mono-transition. Dans cet exemple, une seule transition est excitée, *e.g.* la transition A_5-B_9 ou bien la composante A_5-B_{13} de la raie de pompage f_{2m} (Fig.2.7). Le second graphe correspond à l'excitation simultanée de plusieurs transitions (pompage qualifié de multi-transitions). Dans cet exemple, il s'agit d'un pompage sur la raie de pompage f_{2m} (Fig.2.8).

La simplification des Eqs.2.67 dans le cadre d'un pompage mono-transition permet de trouver un taux de pompage effectif $\tilde{\gamma}_p$ et par la suite un paramètre $\tilde{\gamma}_p/\gamma_e$, indépendant de la pression et duquel dépendent les performances du pompage optique. Un paramètre comparable n'est pas trouvé pour les pompes multi-transitions. Dans ces cas, nous discutons les performances du pompage en les illustrant à diverses pressions.

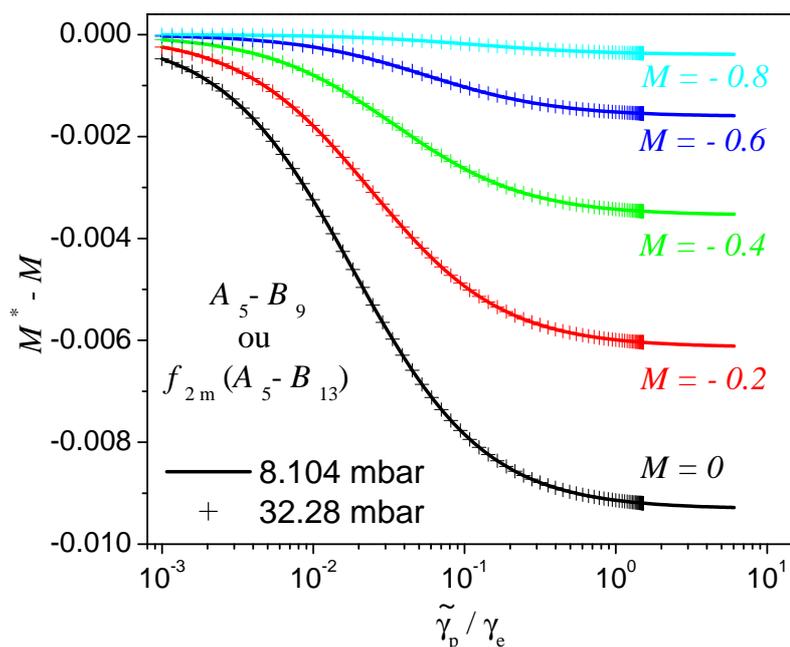


FIG. 2.7 – Variation du terme source ($M^* - M$) à 8 mbar (courbes en traits pleins) et 32 mbar (symboles en croix) en fonction de $\tilde{\gamma}_p/\gamma_e$ (correspondant à $1 \times 10^{-3} < \gamma_p/\gamma_e < 5 \times 10^3$). Dans ce pompage, une seule transition est excitée e.g. A_5-B_9 ou bien la composante A_5-B_{13} de la raie f_{2m} .

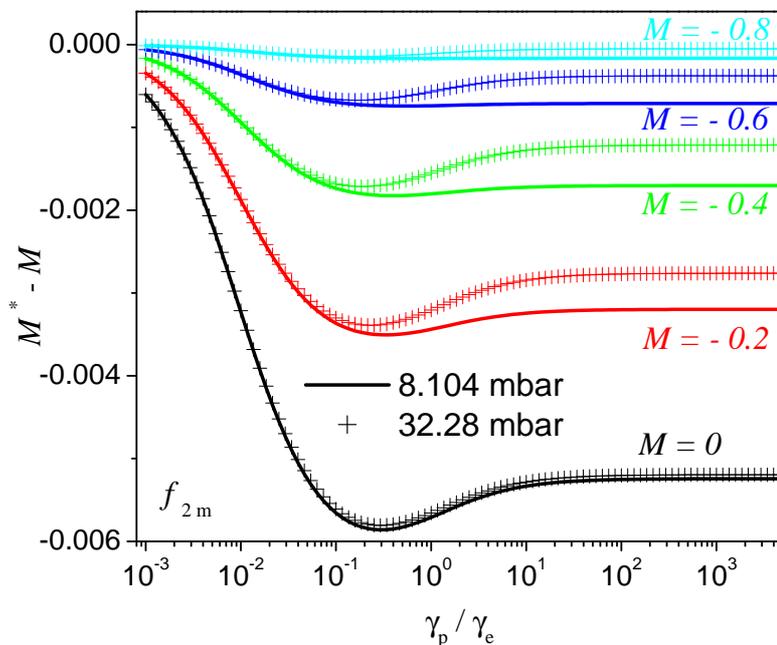


FIG. 2.8 – Variation du terme source ($M^* - M$) en fonction de γ_p/γ_e pour un pompage f_{2m} . Même légende que Fig.2.7.

2.4.2 Limites analytiques aux fortes puissances laser

Dans la limite des fortes intensités laser, le système des Eqs.2.60 non-linéaires peut être résolu analytiquement.

Nous présentons ci-après les calculs permettant d'évaluer l'évolution temporelle de M en prenant en compte les effets d'émission stimulée. Nous considérons successivement les cas de pompage f_{4m} et f_{2m} et comparons les limites analytiques aux calculs numériques.

Ensuite, nous montrons que les pompes multi-transitions (par exemple les raies f_{4m} et f_{2m}) présentent des limitations intrinsèques dépendant de la pression et de la polarisation du gaz.

Finalement nous discutons la validité du modèle simple présenté dans le paragraphe 2.3 et utilisé pour discuter qualitativement les échelles de temps pour la construction de la polarisation M .

Expressions analytiques

Considérons un pompage f_{4m} qui porte l'ensemble de la population dans la paire (A_5, A_6) avec un même taux de pompage $\gamma_p = \gamma_{p\ ij}$ pour les quatre composantes de f_{4m} . En l'absence de toute relaxation dans le niveau métastable 2^3S_1 , les populations à l'état stationnaire vérifient le système :

$$\begin{aligned} 0 &= -\gamma_p\left(a_j - \frac{b}{18}\right) + \frac{\Gamma}{6}b + \gamma_e \left\{ -a_j + \sum_{i=1}^6 (E_{ji} + MF_{ji})a_i \right\} \quad j = 1, \dots, 4 \\ 0 &= \frac{\Gamma}{6}b + \gamma_e \left\{ -a_j + \sum_{i=1}^6 (E_{ji} + MF_{ji})a_i \right\} \quad j = 5, 6 \\ b &= \frac{18\gamma_p(a_1 + a_2 + a_3 + a_4)}{18\Gamma + 4\gamma_p} \end{aligned} \tag{2.70}$$

Nous écrivons les Eqs.2.70 en les développant à l'ordre 0 en $1/\gamma_p$ dans la limite $\gamma_p \rightarrow \infty$ et à Γ et γ_e fixés. À l'état stationnaire, nous obtenons le système suivant :

$$\begin{aligned} 3\Gamma_a + \gamma_e \left\{ -a_j + \sum_{i=1}^6 (E_{ji} + MF_{ji})a_i \right\} &= 0 \quad j = 5, 6 \\ 4a + a_5 + a_6 &= 1 \end{aligned} \tag{2.71}$$

avec $a=a_1=a_2=a_3=a_4$ à l'ordre le plus bas. En développant au premier ordre en s_{\pm} les éléments des matrices d'échange de métastabilité et les solutions stationnaires

du système d'Eq.2.71, l'équation de l'évolution de M devient :

$$\left(\frac{dM}{dt}\right)_{f_{4m}} = \frac{\Gamma_e}{2} s_+ (1 - M) \left\{ 3 - M \left(1 + \frac{4}{3} \frac{\gamma_e}{\Gamma} \right) \right\} \quad (2.72)$$

Un calcul similaire pour un pompage f_{2m} qui porte l'ensemble de la population dans les paires (A_1, A_2) et (A_3, A_4) donne :

$$\left(\frac{dM}{dt}\right)_{f_{2m}} = -\Gamma_e s_+ \frac{(1 + M)^2}{(5 + M)} \left\{ 5 + M \left(1 + \frac{1}{3} \frac{\gamma_e}{\Gamma} \right) \right\} \quad (2.73)$$

Nous présentons une comparaison entre les limites analytiques correspondant aux Eqs.2.72 et 2.73 et les résultats numériques du modèle à 7 populations du pompage optique dans la Fig.2.9. Nous y étudions la variation du terme source

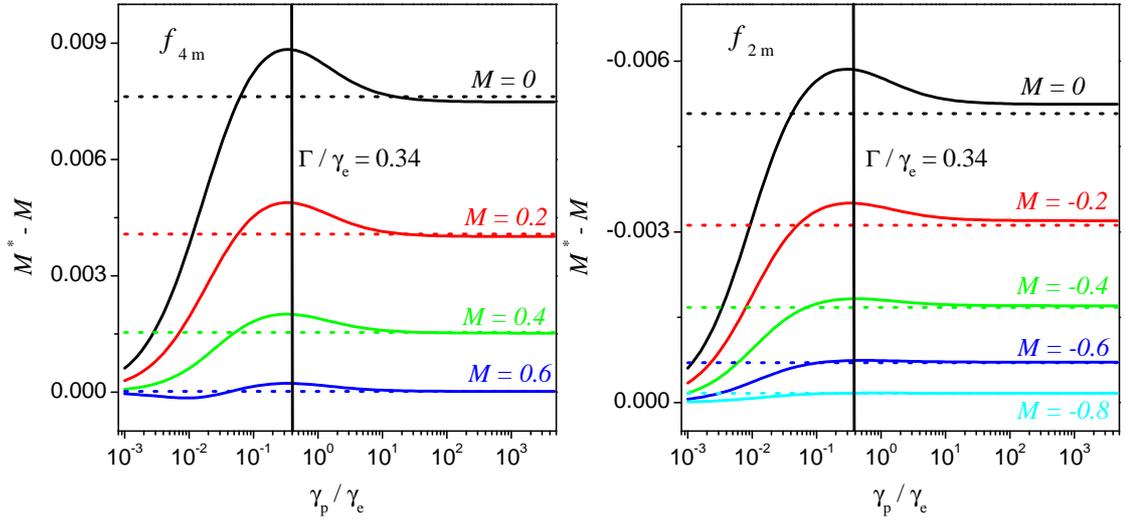


FIG. 2.9 – Variation du terme source $(M^* - M)$ en fonction de γ_p / γ_e à 8 mbar pour des pompages f_{4m} (à gauche) et f_{2m} (à droite). Un bon accord est obtenu entre les résultats du modèle numérique (courbes en traits pleins) et les limites analytiques décrites par les Eqs.2.72 et 2.73 (courbes en traits pointillés). Nous représentons également à titre indicatif Γ / γ_e (trait vertical à 0.34).

$(M^* - M)$ de l'Eq.2.61 en fonction du rapport γ_p / γ_e . De plus, nous indiquons la valeur du rapport Γ / γ_e qui permet de repérer les zones dans lesquelles une saturation optique de la transition est obtenue. Avec les puissances laser à notre disposition, les limites $\gamma_p / \gamma_e \gg \Gamma / \gamma_e$ ne sont pas atteintes. Nous obtenons un bon accord entre les limites analytiques et les résultats numériques pour les deux raies. Un comportement particulier est observé au niveau de la raie f_{4m} : la courbe numérique représentative de $M = 0.6$ montre un changement de signe du terme source de l'Eq.2.61 $(M^* - M)$ dès les faibles γ_p / γ_e , signifiant par là que le pompage

optique par dépeuplement sur la raie f_{4m} présente des limitations intrinsèques et ne peut conduire à des polarisations stationnaires élevées. Ceci résulte de la compétition des quatre transitions de pompage optique et du fait que la transition A_3-B_5 (antagoniste des trois autres) prend une importance croissante à grande M car le sous-niveau A_3 devient de plus en plus peuplé.

Limitations intrinsèques aux fortes pressions

Ces comportements particuliers de changement de signe du terme $(M^* - M)$ sont de plus en plus marqués au fur et à mesure que la pression est élevée, comme le montrent les courbes des Figs.2.10 et 2.11.

À 32 mbar et 67 mbar et pour un pompage f_{4m} , les changements de signe de $(M^* - M)$ sont observés à partir de $M = 0.6$ pour des faibles γ_p et à partir de $M = 0.2$ ou 0.4 pour les γ_p élevés. Pour des pompes f_{2m} menant à des polarisations stationnaires < 0 , les changements de signe pour ces mêmes pressions sont observés à $M = -0.8$ dans la limite des forts taux de pompage. Puis au fur et à mesure que la pression du gaz augmente, ces changements de signe et donc de direction de pompage apparaissent à des polarisations et des taux de pompage plus petits.

Les Eqs.2.72 et 2.73 permettent de retrouver analytiquement les valeurs des pressions à partir desquelles un pompage sur les raies f_{4m} et f_{2m} ne pourrait être efficace dans la limite $\gamma_p \rightarrow \infty$. Les résultats sont représentés dans la Fig.2.12. En absence de tout processus de relaxation dans le niveau fondamental ($\Gamma_1 \rightarrow 0$ dans l'Eq.2.61) et en utilisant des fortes puissances laser, le pompage sur f_{4m} ou f_{2m} mènerait à des polarisations $|M| \rightarrow 1$ pour des pressions P telles que $P < 4$ mbar ou $P < 33$ mbar respectivement. Par ailleurs, pour des pressions telles que $P > 10$ mbar ou $P > 74$ mbar, les pompes sur les raies f_{4m} ou f_{2m} respectivement mèneraient à des polarisations $|M| \leq 0.5$. Dans ces conditions, un pompage sur la raie f_{2m} et à une pression de l'ordre de la pression atmosphérique (1 bar) permettrait de préparer une polarisation de l'ordre de -0.05 . Les pompes mono-transition (*e.g.* sur la transition A_5-B_9 ou bien sur la composante A_5-B_{13} de la raie f_{2m}) n'auraient pas ces limitations intrinsèques (Fig.2.7).

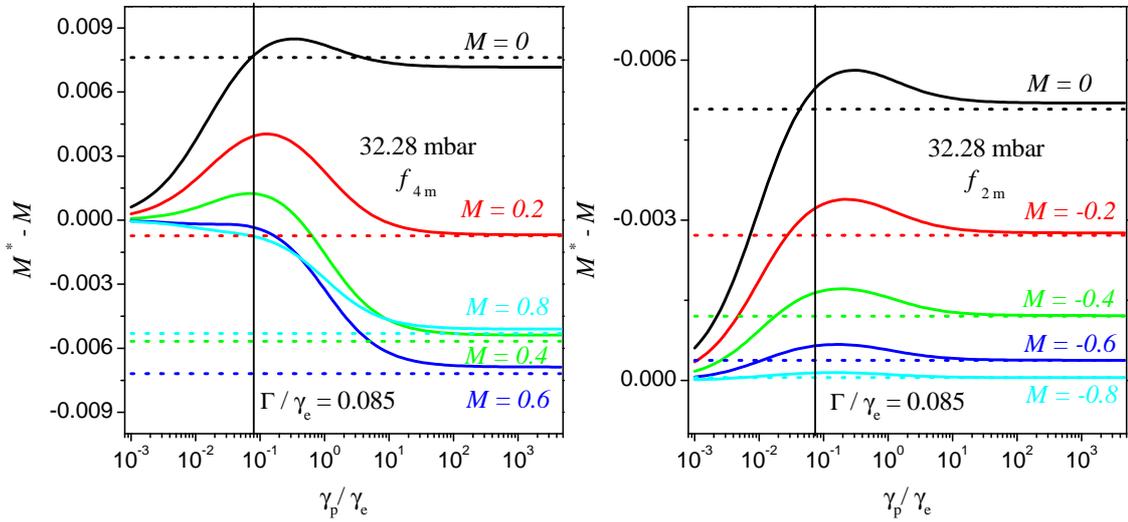


FIG. 2.10 – Môme légende que la Fig.2.9. La pression est ici de 32 mbar.

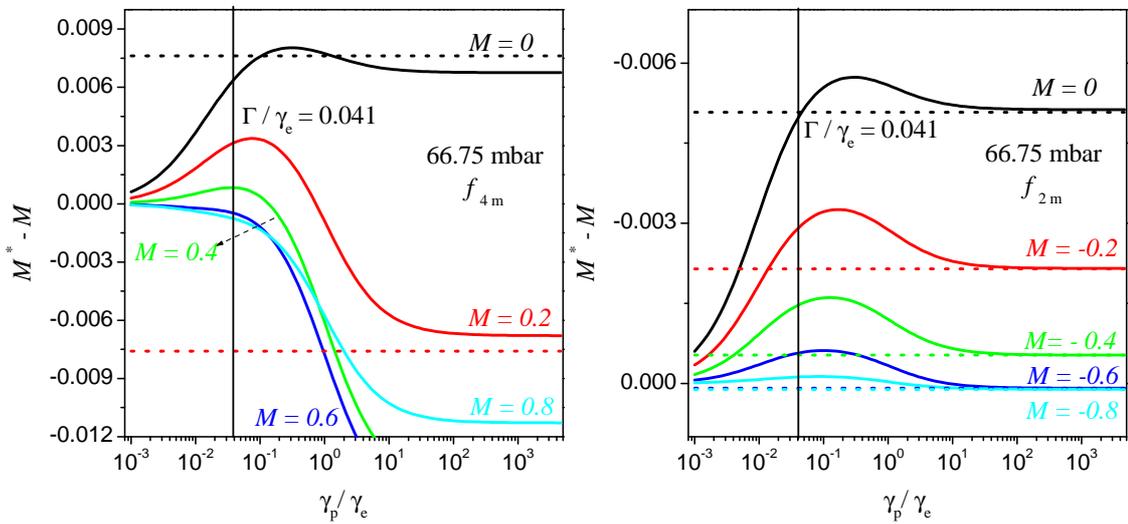


FIG. 2.11 – Môme légende que la Fig.2.9. La pression est ici de 67 mbar.

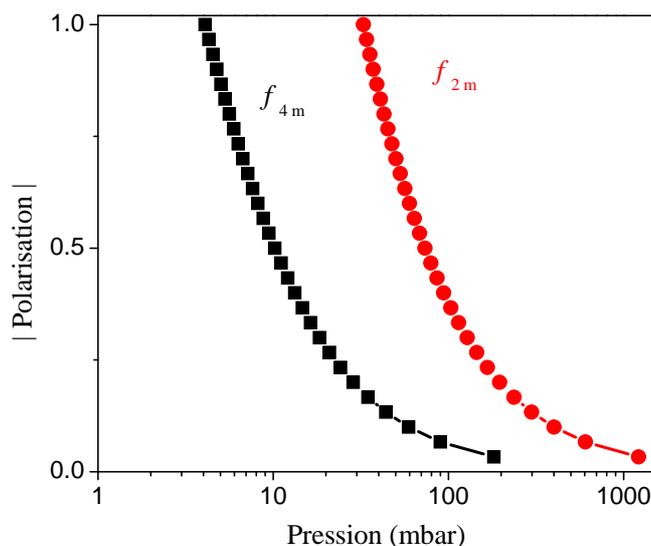


FIG. 2.12 – Variation de la polarisation M maximale en fonction de la pression du gaz. Ces pressions correspondent aux valeurs à partir desquelles un changement de la direction de pompage (changement de signe de dM/dt) est obtenu. Ces courbes découlent de la résolution numérique des Eqs.2.72 et 2.73.

2.4.3 Discussion des erreurs du modèle à 6 populations

À ce stade, nous disposons, en plus du modèle numérique reposant sur 7 populations, de deux équations analytiques qui nous permettent de décrire le régime des fortes intensités laser : il s'agit de l'Eq.2.56 dérivée dans le cadre du modèle à 6 populations et de l'Eq.2.72. Ces deux équations diffèrent d'un facteur κ :

$$\kappa = \frac{1}{2} \left(3 - M \left(1 + \frac{4\gamma_e}{3\Gamma} \right) \right) \quad (2.74)$$

dépendant de la polarisation M et, *via* γ_e , de la pression. Nous présentons dans la Fig.2.13 une comparaison entre les résultats numériques du modèle à 7 populations et le terme source dans l'Eq.2.56. Pour des puissances laser telles que $0.1\Gamma < \gamma_p < \Gamma$ et à $M = 0$, les deux modèles sont équivalents à moins de 50 % près. Dans le régime des fortes puissances laser, la comparaison entre les deux modèles se ramène à une évaluation du facteur κ . À $M = 0$, κ est de l'ordre de 1.5 pour toutes les pressions. Par contre, pour $M \neq 0$, le modèle à 6 populations est incorrect, même qualitativement, dans la limite des fortes pressions.

Les différences entre les deux modèles sont en effet dues aux hypothèses sur lesquelles repose le modèle à 6 populations. Les erreurs proviennent essentiellement :

- d'un transfert incomplet de la population des atomes dans la paire de sous-

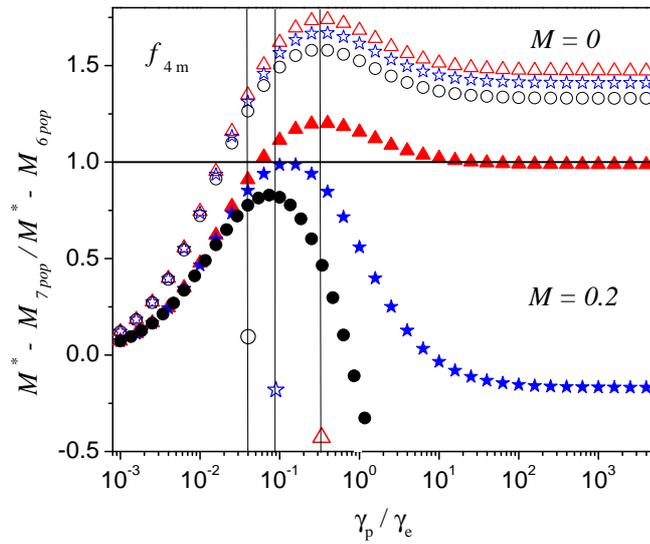


FIG. 2.13 – Comparaison des termes source ($M^* - M$) calculés numériquement d’après les modèles à 6 et 7 populations. Les résultats correspondent à un pompage sur la raie f_{4m} à 8 mbar (triangles), 32 mbar (étoiles) et 67 mbar (cercles) pour deux valeurs de la polarisation $M = 0$ (symboles creux) et $M = 0.2$ (symboles pleins). Les trois traits verticaux avec un symbole représentatif de la pression correspondent à $\Gamma/\gamma_e = 0.336$ à 8 mbar, 0.084 à 32 mbar et 0.041 à 67 mbar.

niveaux (A_5, A_6) par excitation laser des paires de sous-niveaux (A_1, A_2), (A_3, A_4) et dépendant de la pression.

- de déviations des populations de la distribution en température de spin, avec des erreurs de l'ordre de $\sin^2 \theta_+ \sim 10^{-2}$.

Toutefois, en dépit des hypothèses sur lesquelles il repose, le modèle simple constitue un outil qui permet de discuter qualitativement l'influence de l'intensité d'un champ magnétique sur la dynamique du pompage optique et de retrouver l'échelle de temps caractéristique de la construction de M .

2.5 Extensions réalistes des modèles

2.5.1 Modèle à 24 populations

Nous pouvons envisager le cas où la redistribution collisionnelle dans l'état 2^3P n'est pas totale, avec un taux de collision fini et des populations dans les sous-niveaux B_j différentes. Par rapport à la modélisation de [Nac85b], un raffinement de la description des taux de redistribution collisionnelle dans le niveau 2^3P inspiré par le découplage hyperfin peut être envisagé. Comme les collisions dépolarisantes dans le 2^3P conserveraient le spin nucléaire, nous pouvons imaginer qu'elles couplent essentiellement les atomes d'un même m_I . Nous séparons artificiellement les sous-niveaux du 2^3P en deux groupes de 9 sous-niveaux chacun selon le signe dominant du m_I . À 1.5 Tesla, les sous-niveaux de m_I dominant $+1/2$ sont $B_2, B_4, B_5, B_8, B_9, B_{11}, B_{13}, B_{14}$ et B_{17} ; nous les identifions par l'indice $+$. Les autres sous-niveaux sont de m_I dominant $-1/2$ et sont identifiés par l'indice $-$.

Nous introduisons de façon certes globale mais un peu plus réaliste deux taux de redistribution dans le niveau 2^3P : un taux γ_{rapide}^{rel} couplant les populations des sous-niveaux à l'intérieur d'un même groupe et un taux γ_{lente}^{rel} couplant entre elles les populations des deux groupes. Les équations d'évolution des populations s'écrivent alors :

$$\begin{aligned} \frac{db_{m+}}{dt} &= -\gamma_{rapide}^{rel} \left(b_{m+} - \frac{\sum_{n+} b_{n+}}{9} \right) - \gamma_{lente}^{rel} \left(b_{m+} - \frac{\sum_{n-} b_{n-}}{9} \right) \\ \frac{db_{m-}}{dt} &= -\gamma_{rapide}^{rel} \left(b_{m-} - \frac{\sum_{n-} b_{n-}}{9} \right) - \gamma_{lente}^{rel} \left(b_{m-} - \frac{\sum_{n+} b_{n+}}{9} \right) \end{aligned} \quad (2.75)$$

Les deux constantes de redistribution tiendraient compte à la fois des effets de la pression du gaz et du découplage hyperfin dû au champ magnétique.

Dans ces conditions, la modélisation du pompage optique avec une situation à 24 populations repose, comme pour le modèle à 7 populations, sur la résolution numérique des Eqs.2.18. Toutefois, la contribution des processus de relaxation

dans le niveau 2^3P dérive des Eqs.2.75.

Nous présentons à titre illustratif dans la Fig.2.14 une comparaison de la polarisation M^* à $M = 0$ entre les résultats numériques des modèles à 7 et 24 populations aux trois pressions que nous avons considérées expérimentalement, 8 mbar, 32 mbar et 67 mbar. γ_p correspond à la plus grande intensité laser

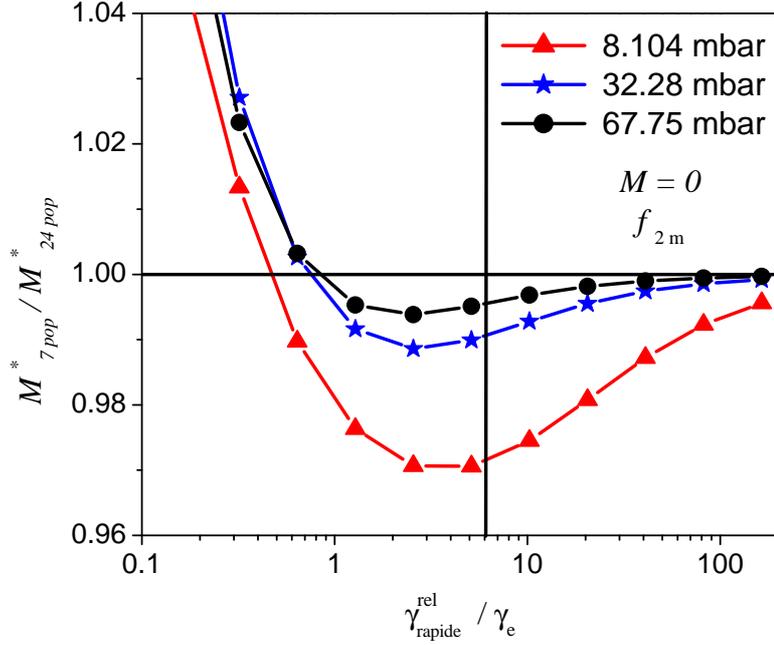


FIG. 2.14 – Comparaison des résultats des modèles à 7 et 24 populations à $M = 0$. L'effet de deux taux de redistribution dans le niveau 2^3P sur la polarisation M^* est considéré à 8 mbar (triangles), 32 mbar (étoiles) et 67 mbar (cercles). $\gamma_{rapide}^{rel}/\gamma_{lente}^{rel} = 100$ pour tenir compte du découplage hyperfin à 1.5 Tesla. γ_p/γ_e vaut 0.304 à 8 mbar, 0.076 à 32 mbar et 0.036 à 67 mbar. Nous avons indiqué par un trait vertical la valeur $\gamma_{rapide}^{rel}/\gamma_e$ correspondant aux mesures de [Sch67], [Lan68].

(Eq.2.33) que nous avons utilisée; γ_p/γ_e vaut 0.304 à 8 mbar, 0.076 à 32 mbar et 0.036 à 67 mbar. Deux ordres de grandeur séparent les taux de redistribution γ_{rapide}^{rel} et γ_{lente}^{rel} pour tenir compte du découplage hyperfin caractérisé par l'angle de mélange (Eq.2.15). Nous explorons pour notre comparaison l'intervalle $\gamma_e/10 < \gamma_{rapide}^{rel} < 200\gamma_e$. Cet intervalle est choisi pour compatibilité avec les mesures des sections efficaces des collisions d'échange de métastabilité dans le niveau 2^3S_1 (paragraphe 2.2.2) et des collisions dépolarisantes dans le niveau 2^3P (paragraphe 2.2.3). Les deux modèles sont équivalents dans la limite $\gamma_{rapide}^{rel}/\gamma_e \rightarrow \infty$. Par ailleurs, dans l'intervalle considéré, une nette dépendance vis à vis de la pression du gaz est observée : en effet, au fur et à mesure que la

pression diminue, les différences entre les deux modèles augmentent. Toutefois, les différences restent quantitativement très faibles ($< 3\%$).

Nous considérons dans la Fig.2.15 la variation de M^* à relativement faible pression (8 mbar) sous l'effet de la puissance laser pour trois valeurs de $\gamma_{rapide}^{rel}/\gamma_e$ et comparons les résultats par rapport aux résultats du modèle à 7 populations. D'après les mesures de sections efficaces des collisions dépolarisantes [Sch67], [Lan68], la valeur de $\gamma_{rapide}^{rel}/\gamma_e$ serait de 6. Des différences allant jusqu'à près de 15 % sont obtenues dans le régime des puissances faibles et allant jusqu'à 25 % dans le régime des puissances fortes pour le pompage f_{4m} . Les effets sont moins dramatiques pour un pompage f_{2m} . Pour les pressions élevées, les différences obtenues sont inférieures à 10 %.

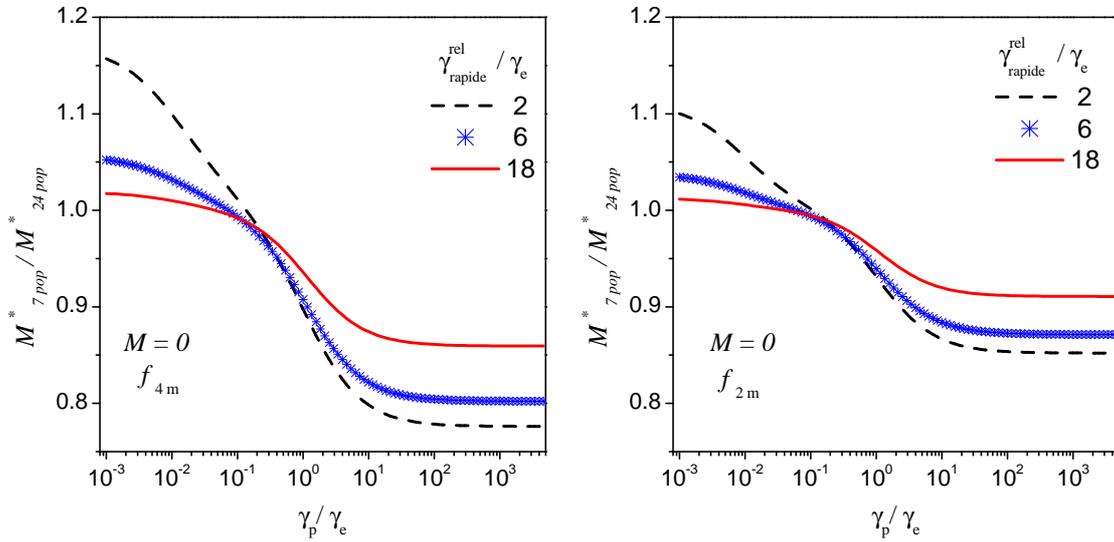


FIG. 2.15 – Comparaison des résultats des modèles à 7 et 24 populations à 8 mbar et à $M = 0$ pour des pompages f_{4m} (à gauche) et f_{2m} (à droite). Trois valeurs de $\gamma_{rapide}^{rel}/\gamma_e$ sont considérées : 2 (courbe en traits pointillés), 6 (symboles en astérisques [Sch67], [Lan68]) et 18 (courbe en traits pleins). $\gamma_{rapide}^{rel}/\gamma_{lent}^{rel} = 100$.

Une modélisation réaliste des processus de pompage optique aux faibles pressions devrait certainement tenir compte des effets conjugués du découplage hyperfin et des collisions dépolarisantes. Également aux faibles pressions, d'autres processus pertinents doivent être pris en compte. Il faudra notamment considérer pour l'interaction entre les atomes et le laser une distribution continue des probabilités de transition dépendant de la distribution thermique des vitesses atomiques et de la distribution spectrale du laser [Nac85b]. Comme nous sommes intéressés dans notre travail par les performances du pompage optique aux pressions élevées,

nous n'avons pas procédé à une modélisation dans cette direction. Le modèle à 7 populations est adapté aux conditions de notre étude et nous nous en servons dans la suite.

2.5.2 Effets de la distribution de la puissance laser

L'interaction entre les atomes et le laser dépend aussi de la distribution spatiale des atomes dans la cellule de pompage. Dans notre étude, nous avons considéré un pompage effectué avec une puissance laser uniforme. Dans ces conditions, nous divisons géométriquement la cellule en deux zones : une zone éclairée par le faisceau laser et une zone obscure (hors du faisceau laser). Les atomes sont donc spatialement séparés en deux catégories : dans le faisceau et hors du faisceau laser. Les atomes des deux zones interagissent ensemble par diffusion, diffusion d'autant plus lente que la pression du gaz est élevée (constante de temps de l'ordre de 0.75 ms/mbar dans des cellules cylindriques de dimensions 5 cm×5 cm). Par ailleurs, et comme la diffusion des atomes est rapide par rapport aux autres processus entrant en jeu, la polarisation est uniforme dans l'ensemble de la cellule. Finalement, l'Eq.2.61 d'évolution de la polarisation doit être modifiée pour tenir compte des fractions d'atomes X_f contenus dans le faisceau laser et $(1 - X_f)$ à l'extérieur du faisceau laser.

Se placer dans le contexte de cette approche revient expérimentalement à diaphragmer le faisceau pompe de puissance quasi-uniforme de telle sorte que deux zones sont géométriquement délimitées le long de la cellule. La difficulté de délimiter les deux zones aux faibles pressions, là où les atomes diffusent d'une zone à l'autre sur des échelles de temps courtes, demeure le principal handicap de cette approche. Nous discutons dans quelle mesure nous pouvons nous en affranchir ou en tenir compte dans le paragraphe 6.1.4.

Chapitre 3

Montage expérimental

Avant d'entrer dans le détail des mesures expérimentales, nous consacrons ce chapitre à la description du dispositif expérimental utilisé.

Dans un premier temps, nous présentons une description succincte de l'imageur clinique au sein duquel les expériences ont été effectuées.

Ensuite, nous nous attachons à décrire les cellules scellées d'hélium-3 et les décharges radiofréquences utilisées pour peupler les atomes d'hélium-3 dans l'état métastable 2^3S_1 .

Puis nous présentons le principe du montage optique, sa réalisation pratique et le dispositif amagnétique mis en place pour notre étude.

Finalement, nous décrivons les lasers pompe et sonde utilisés, avant de terminer par une description succincte du système de mesure.

3.1 Source du champ magnétique

Nos expériences de pompage optique à 1.5 Tesla ont été menées au CIERM (Centre Inter Établissement de Résonance Magnétique), à l'hôpital du Kremlin Bicêtre. Nous avons utilisé le champ magnétique à 1.5 Tesla d'un appareil clinique d'imagerie médicale (SIGNA, General Electric, Milwaukee, USA), basé sur un aimant horizontal supraconducteur (Fig.3.1). Le tunnel de l'imageur a un diamètre de 0.55 m et une profondeur de environ 2 m. Des bobinages d'homogénéisation sont installés sur l'appareil clinique et sont réglés, dans le cadre de l'entretien technique de l'imageur, de façon à assurer une inhomogénéité relative du champ magnétique de l'ordre de 2 ppm sur une sphère de diamètre 0.4 m. L'intensité exacte du champ magnétique au centre de l'imageur est déterminée par des expériences de RMN avec l'hydrogène 1H ; la fréquence de résonance de l' 1H (63.83 MHz) correspond



FIG. 3.1 – Photo de l'appareil clinique d'imagerie médicale (SIGNA, General Electric, Milwaukee, USA) implanté à l'hôpital du Kremlin-Bicêtre de 1985 à 2004. L'imageur clinique est basé sur un aimant horizontal supraconducteur qui produit un champ magnétique homogène de 1.5 Tesla.

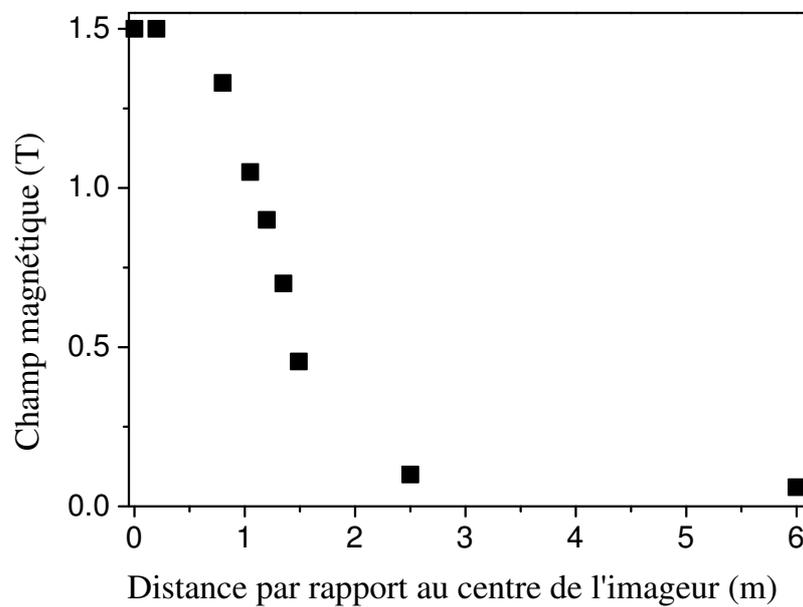


FIG. 3.2 – Variation de l'intensité du champ magnétique le long de l'axe horizontal de l'imageur.

à la valeur de 1.4992 Tesla. Les bobines supraconductrices sont conçues de façon à assurer un champ magnétique le plus homogène possible au centre du tunnel. Le long de l'axe horizontal de l'imageur, l'intensité du champ magnétique décroît progressivement ; sur une distance de 25 cm, elle passe de 1.33 Tesla à 0.95 Tesla, provoquant des gradients de champ longitudinaux allant jusqu'à 15 mT/cm à la sortie du tunnel. Sur la Fig.3.2, nous présentons la variation de l'intensité du champ magnétique B avec la distance par rapport au centre de l'imageur, l'axe Oz étant l'axe parallèle au champ magnétique statique de 1.5 Tesla. Les valeurs du champ magnétique aux différentes positions repérées à 1 cm près, ont été déduites des mesures des écarts énergétiques entre les sous-niveaux Zeeman avec une précision relative de l'ordre de 1 %.

3.2 Cellule et décharge radiofréquence

3.2.1 Cellules scellées d'hélium-3

L'hélium-3 gazeux est contenu dans des cellules scellées en Pyrex, cylindriques de diamètre et longueur internes 4.6 cm (Fig.3.3). Nous avons utilisé plusieurs cellules remplies par J. Brossel ou P.-J. Nacher où l'hélium-3 est aux pressions de 1.33 mbar, 8 mbar (8.11 ± 0.06 mbar), 32 mbar (32.28 ± 0.11 mbar), 67 mbar (66.75 ± 0.11 mbar) et 133 mbar (132.33 ± 0.07 mbar).

Le temps de vie des métastables peut être considérablement raccourci par les collisions de l'hélium-3 avec des impuretés contenues dans la cellule. Pour limiter ce phénomène, de nombreuses précautions ont été prises au moment du nettoyage et remplissage des cellules. Après plusieurs jours d'étuvage dans un four à 700 K sous vide poussé, la cellule est remplie d'hélium et soumise à des décharges micro-ondes (2.4 GHz, 100 W), puis vidée. Cette procédure est répétée plusieurs fois jusqu'à ce que seules les raies de l'hélium soient détectées dans la fluorescence du plasma.

Dans certaines de nos expériences, nous avons également utilisé une autre géométrie de cellule, que nous désignerons par "cellule à os" (Fig.3.3). Il s'agit d'une cellule à 40.4 mbar d'hélium-3, composée d'une partie cylindrique de diamètre 0.8 cm et de longueur 10 cm et d'une partie sphérique de diamètre 6 cm. Cette cellule a été initialement fabriquée pour d'autres études ; sa partie sphérique servait de réservoir d'hélium-3 polarisé pour des mesures par RMN. Dans notre cas, sa partie cylindrique de faible diamètre est particulièrement adaptée pour entretenir un plasma d'atomes métastables intense dans le tube cylindrique et donc avoir une absorption du laser pompe par les atomes métastables plus forte que dans les autres cellules.

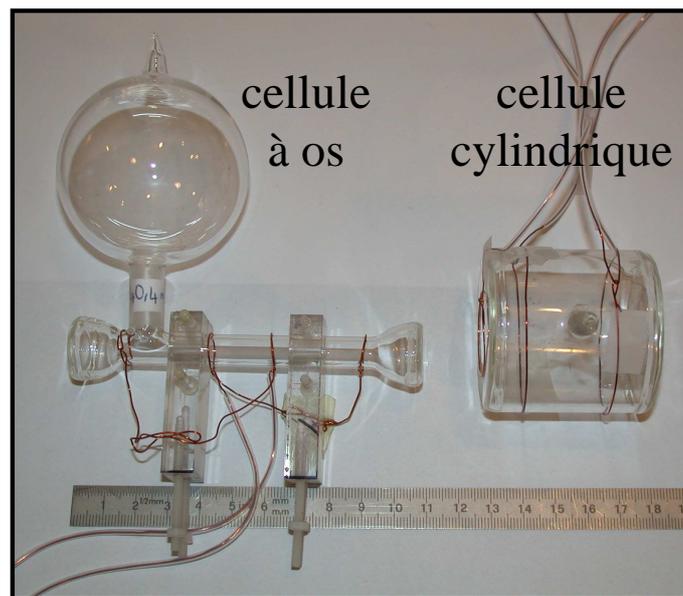


FIG. 3.3 – Photos des cellules scellées d'hélium-3. - À droite, photo de la cellule cylindrique (de dimensions internes $4.6\text{ cm} \times 4.6\text{ cm}$) avec deux paires d'électrodes montées. - À gauche, photo de la cellule à os (40.4 mbar d'hélium-3). La partie cylindrique de la cellule (tube de longueur 10 cm et diamètre 0.8 cm) est particulièrement adaptée pour augmenter les absorptions des lumières laser par les atomes métastables.

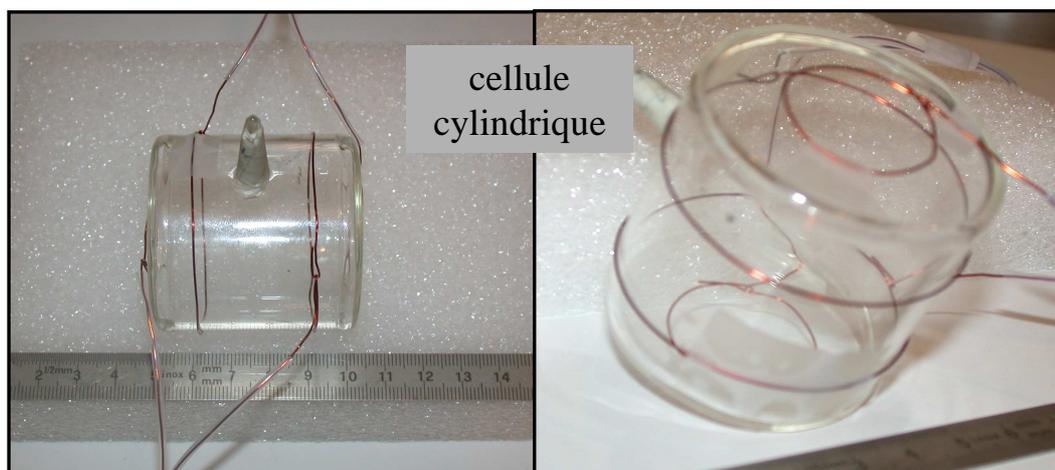


FIG. 3.4 – Photo de la cellule cylindrique (de dimensions internes $4.6\text{ cm} \times 4.6\text{ cm}$) avec deux paires d'électrodes circulaires; deux petites électrodes de diamètre 2.5 cm sont posées contre les fenêtres optiques de la cellule, les deux autres de diamètre 5 cm sont enroulées sur la cellule. Les électrodes sont connectées deux à deux au même potentiel de sorte que deux électrodes successives ont des potentiels de polarité opposée.

3.2.2 Décharge radiofréquence et électrodes

Pour peupler l'état métastable 2^3S_1 des atomes d'hélium-3, des décharges radiofréquences à $2\text{-}3\text{ MHz}$ sont utilisées. Un plasma d'hélium-3 est entretenu grâce à l'utilisation d'une ou plusieurs paires d'électrodes circulaires placées sur les parois externes de la cellule scellée d'hélium-3. Les électrodes excitatrices sont faites en fil de cuivre (de diamètre 0.5 mm) et sont reliées aux bornes d'un circuit accordé élévateur pour une excitation du type "capacitif". Pour les cellules cylindriques de faible pression (*e.g.* 1.33 mbar), seule une paire d'électrodes circulaires extérieures et enroulées autour de la cellule (diamètre 5 cm) est utilisée. Pour les cellules de plus forte pression, deux paires d'électrodes circulaires sont utilisées; deux petites électrodes de diamètre 2.5 cm sont posées sur les fenêtres optiques de la cellule et les deux autres de diamètre 5 cm sont enroulées sur la partie cylindrique de la cellule. Les quatre électrodes sont connectées deux à deux au même potentiel de sorte que deux électrodes successives ont des potentiels de polarité opposée, comme montré dans la photo de la Fig.3.4. La cellule est montée de façon à ce que le champ électrique de la décharge radiofréquence soit parallèle au champ magnétique statique. Dans ces conditions, il est beaucoup plus facile d'entretenir la décharge radiofréquence au sein du plasma d'hélium-3 et il se trouve que le pompage optique y est plus favorable en termes de polarisation nucléaire obtenue et taux de pompage (détails expérimentaux dans le paragraphe 5.2).

3.3 Montage optique : principe et réalisation pratique

Principe

Pour notre étude systématique du pompage optique à 1.5 Tesla, nous avons utilisé une configuration simple basée sur l'utilisation d'un laser pompe et d'un laser sonde. Le schéma du montage expérimental est présenté dans la Fig.3.5. Un premier laser, le laser pompe, est parallèle au champ magnétique statique de l'imageur clinique. De polarisation circulaire σ^- ou σ^+ , il est utilisé pour interagir avec les atomes et créer une orientation nucléaire dans l'échantillon d'hélium-3. Le faisceau pompe, peu absorbé après avoir traversé la cellule contenant le gaz à polariser, est renvoyé sur lui-même par un miroir pour améliorer l'efficacité du pompage. Un deuxième laser, le laser sonde, est utilisé pour mesurer les populations des sous-niveaux métastables et déduire ainsi la polarisation nucléaire. Le laser sonde qui se propage perpendiculairement au champ magnétique est d'une polarisation linéaire verticale σ par rapport à l'axe horizontal de quantification ; il est donc une superposition d'un faisceau σ^- et σ^+ .

Réalisation pratique

Plusieurs raisons nous ont amenés à construire un dispositif expérimental, portable et amagnétique, spécialement dédié à notre étude systématique de pompage optique en fort champ magnétique (Fig.3.6).

Nos expériences ont été effectuées à l'extérieur des locaux du laboratoire. Comme plusieurs équipes se relaient pour l'utilisation de l'imageur du CIERM pour des fins de recherche médicale, nous avons essentiellement accès au champ magnétique pour les créneaux libres et les week-ends. Une des principales difficultés de notre expérience est que le montage doit être réinstallé à chaque nouveau jour de manipulations ; tous les alignements optiques doivent être refaits et ajustés (Fig.3.7).

Le dispositif expérimental a été fabriqué en utilisant des matériaux amagnétiques, essentiellement l'altuglas et le dural. Il est constitué d'une planche en altuglas, de dimension 50 cm×50 cm (voir la photo de la Fig.3.6). Certaines montures d'optiques (lentille, lame retardatrice, cube polariseur, support de cellule) sont usinées dans de l'altuglas, d'autres éléments tels que les tubes des collimateurs, les diaphragmes, les bloque-faisceaux ou les boîtiers des photodiodes sont en dural. Les chips magnétiques des photodiodes sont solidement fixés dans des montures en plexiglas. L'utilisation de matériaux amagnétiques est obligatoire car dans un environnement de champ et gradients de champ magnétique intenses, il est important de respecter certaines règles de sécurité, notamment manipuler et utiliser un matériel amagnétique. De plus, il est connu que des hétérogénéités du champ magnétique peuvent perturber le processus de construction de la polari-

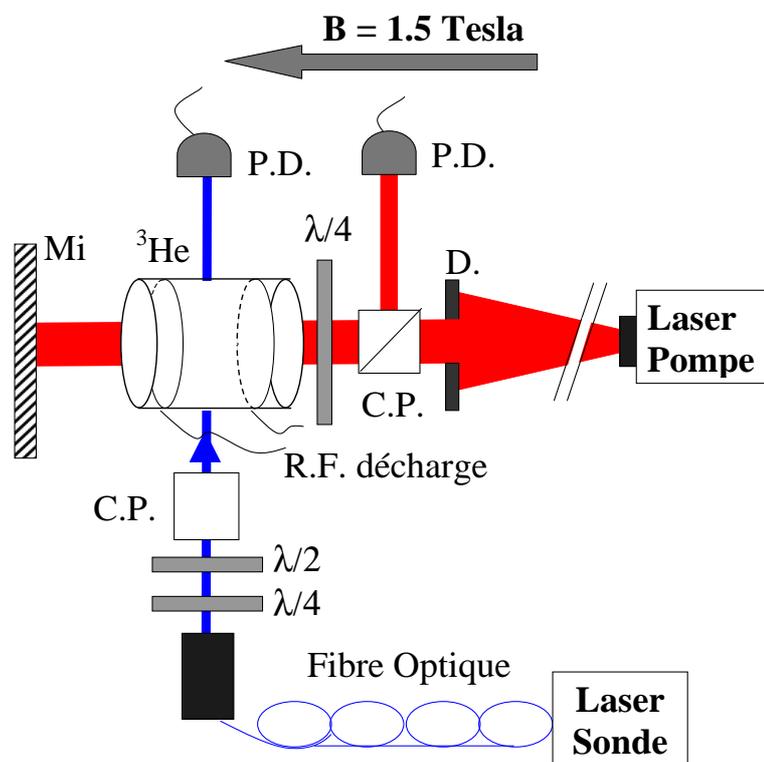


FIG. 3.5 – Schéma du montage expérimental. Le faisceau pompe polarisé circulairement se propage parallèlement au champ magnétique statique de l’imageur clinique. Le faisceau sonde de polarisation linéaire verticale σ se propage perpendiculairement au champ magnétique. C.P., $\lambda/2$ et $\lambda/4$ sont respectivement des cubes polariseurs et des lames retardatrices demi-onde et quart d’onde utilisées pour ajuster l’intensité et la polarisation des faisceaux laser ; Mi est un miroir ; D est un diaphragme circulaire de diamètre 1.5 cm ; R.F. décharge est la décharge radiofréquence entretenue par des électrodes posées sur les parois externes de la cellule ; P.D. sont des photodiodes pour l’infra-rouge.

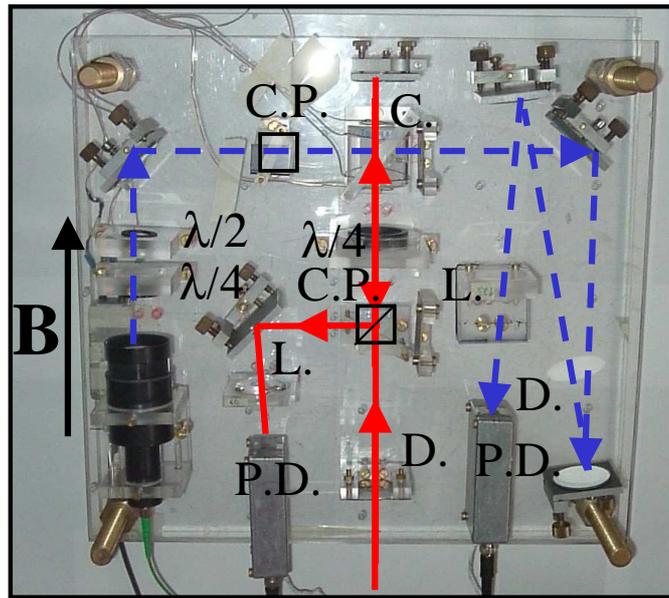


FIG. 3.6 – Vue de dessus du dispositif expérimental amagnétique comportant la cellule de pompage optique (C.), les optiques nécessaires pour ajuster les dimensions, l'intensité et la polarisation des faisceaux laser (L. lentille, D. diaphragme, C.P. cube polariseur, $\lambda/2$ et $\lambda/4$ lames retardatrices demi-onde et quart d'onde) et les photodiodes (P.D.). \mathbf{B} est le champ magnétique statique de l'imageur clinique. Le trajet parcouru par le faisceau pompe est représenté en traits pleins; celui parcouru par le faisceau sonde est représenté en traits pointillés.



FIG. 3.7 – Vue d’ensemble. Les lasers (dont la diode sonde au premier plan), les appareils électroniques et le système d’acquisition informatique restent dans une région de faible champ magnétique.

sation nucléaire par pompage optique et limiter son efficacité (paragraphe 2.2.3). En réduisant l’usage de matériaux magnétiques au voisinage de la cellule de pompage optique, il est possible d’allonger le temps de relaxation de la polarisation nucléaire $T_{1\ magn} = 1/\Gamma_{1\ magn}$. De plus, tous les appareils électroniques, les lasers et le système d’acquisition informatique restent dans une région de faible champ magnétique.

3.4 Les lasers sonde et pompe

3.4.1 Le laser sonde

Le laser sonde utilisé est une diode laser monomode DBR à 1083 nm, commercialisée par Spectra Diode Laboratories (SDL), de puissance de l’ordre de 50 mW et de polarisation linéaire. La diode monomode DBR utilisée n’est pas asservie sur une cavité ou un réseau externe, et sa largeur en fonctionnement libre est de l’ordre de 2-3 MHz FWHM. La fréquence du laser sonde est contrôlée par un asservissement de la température de la diode, régulée par un élément Peltier intégré dans le boîtier de la diode. Le thermomètre d’asservissement, lui aussi intégré à la diode, forme une des branches d’un pont de Wheatstone. En faisant varier une tension de consigne, il est possible de balayer la fréquence du laser sonde pour explorer la

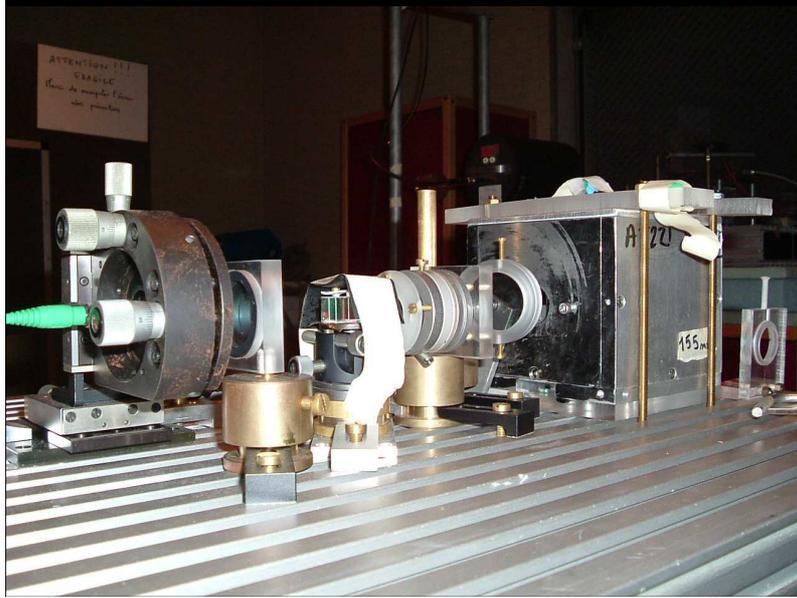


FIG. 3.8 – Vue de côté du dispositif de couplage de la diode laser sonde dans une fibre optique. En sortie de la fibre optique, le faisceau laser sonde est étalé et atténué de façon à avoir une puissance surfacique de l'ordre de $1 \mu\text{W}/\text{cm}^2$.

structure atomique de l'hélium-3 à 1.5 Tesla ($\sim 150 \text{ GHz}$).

Le faisceau sonde est couplé à une fibre optique en utilisant deux lentilles de collimation de focale $f = 8 \text{ mm}$ (Melles Griot) et 11 mm (référence Thorlabs F220FC-C) et un isolateur optique composé d'un cube polariseur et d'une lame quart-d'onde pour éviter les retours de réflexions parasites dans la diode laser (voir Fig.3.8). Ces rétro-réflexions peuvent être à l'origine de sauts de modes (mode-hopping) et empêcher de balayer régulièrement la fréquence de la diode. En sortie de la fibre d'ouverture numérique 0.13, le faisceau est collimaté sur un grand diamètre en utilisant une lentille de focale $f = 125 \text{ mm}$. Il est ensuite atténué de façon à assurer une puissance surfacique de l'ordre de $1 \mu\text{W}/\text{cm}^2$. Après avoir traversé la cellule, le faisceau sonde parcourt une distance de plus de 1 m (le trajet parcouru est montré dans la Fig.3.6) ; il est ensuite focalisé, diaphragmé et recueilli sur une photodiode et son intensité moyenne est enregistrée. Ces précautions sont importantes pour éliminer toute lumière parasite, notamment celle due au laser pompe.

3.4.2 Le laser pompe : diode laser amplifiée

Plusieurs sources lasers accordables en fréquence à 1083 nm sont disponibles sur le marché et peuvent servir pour le pompage optique par échange de métastabilité de l'hélium-3 [Gen03]. Historiquement, plusieurs générations de lasers ont été utilisées. Ce fut d'abord des lasers à centres colorés (centres F_2^+

Yb-doped fibre amplifier

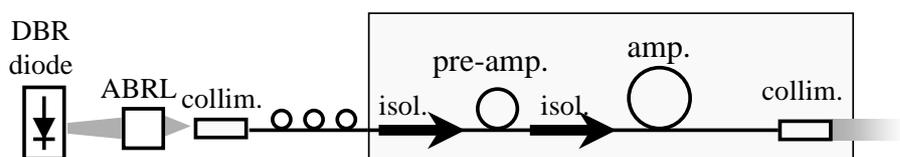


FIG. 3.9 – Schéma de principe du laser pompe (diode laser amplifiée) utilisé dans la plupart de nos expériences. L'oscillateur maître est une diode laser monomode DBR (provenance SDL, de puissance nominale 50 mW et de polarisation linéaire). La diode laser est couplée à l'amplificateur de puissance dopé Ytterbium. L'isolateur optique (ou ABRL anti back-reflected light) composé d'un cube polariseur et d'une lame quart d'onde permet d'éviter les retours parasites de lumière réfléchie dans la diode laser [Che97].

dans des cristaux de NaF) [Led82], dont l'émission était instable dans le temps. Ensuite, ils ont été remplacés par des lasers à cristaux dopés de Néodyme (LNA) : pompés par des lasers à gaz, ils délivrent des puissances de l'ordre d'une centaine de mW [Dan87]. Les cristaux de Néodyme peuvent aussi être pompés par des diodes lasers. 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 [Ami89], [Gen93]. Plus récemment, au début des années 1990, des diodes lasers DBR (Distributed Bragg Reflector) monomodes à 1083 nm fabriquées par SDL sont apparues ; elles fournissent une puissance nominale de l'ordre de 50 mW [Maj93], [Sto96a]. Elles ont depuis été remplacées sur le marché par des diodes similaires commercialisées par Eagleyard. Depuis la fin des années 1990, des amplificateurs à base de fibre dopée ytterbium (Yb) sont commercialisés par IPG Photonics (anciennement IRE-Polus Group) et Keopsys. La combinaison d'une diode laser et d'un tel amplificateur donne une source en configuration dite MOPFA (Master Oscillator Power Fiber Amplifier). Dernièrement, en étroite collaboration avec notre groupe, la société Keopsys a développé des sources laser où la diode laser est remplacée par un oscillateur lui aussi à fibre dopée Yb [Tas04] délivrant une puissance continue allant jusqu'à plusieurs watts.

Dans notre étude de pompage optique en fort champ magnétique et à pression élevée, nous avons utilisé comme laser pompe (sauf indication de notre part) une diode laser combinée à un amplificateur à fibre optique dopée Ytterbium [Che97] pouvant délivrer une puissance de l'ordre de 500 mW. Le schéma de principe de la diode laser amplifiée est représenté dans la Fig.3.9. L'oscillateur maître est une diode laser monomode DBR identique à la diode sonde. Les caractéristiques spectrales des diodes lasers DBR sont détaillées dans le paragraphe 3.4.1. De la

même manière que pour le couplage du laser sonde à la fibre optique, la diode laser pompe est couplée à la fibre monomode d'entrée de l'amplificateur en utilisant deux lentilles de collimation (de focales $f = 8$ mm et 11 mm) et un isolateur optique. La fibre optique permettant le couplage de la diode à l'amplificateur passe dans un contrôleur de polarisation. Celui-ci se compose d'un jeu de trois palettes dans lesquelles la fibre effectue un certain nombre de boucles, chaque boucle constituant une lame retardatrice. En ajustant les positions des palettes, il est possible d'ajuster l'axe rapide de la fibre et de contrôler la polarisation de la lumière en sortie de la diode laser amplifiée. Le faisceau laser en sortie de l'amplificateur est dans le mode gaussien TEM₀₀. Le collimateur, monté par le constructeur au bout de la fibre optique de sortie, donne un faisceau lentement divergent. Nous avons mesuré la répartition transverse de l'intensité du laser pompe au niveau de la cellule de pompage optique, à l'aide d'un puissance-mètre et d'un diaphragme circulaire (diamètre 5 mm) que nous avons déplacé pour balayer toute la "surface" du faisceau pompe. L'intensité du laser obéit à une distribution spatiale en gaussienne. On trouve que :

$$I(r) = I_0 e^{-2r^2/w^2} = \frac{2P}{\pi w^2} e^{-2r^2/w^2} \quad (3.1)$$

avec

$$P = 2\pi \int I(r)rdr \quad (3.2)$$

où r est la distance par rapport à l'axe optique longitudinal et w est le waist du faisceau au niveau de la cellule de pompage optique. Au niveau de la fenêtre optique de la cellule, le profil de distribution spatiale gaussienne de l'intensité laser a un waist $w = 1.3$ cm ; en termes de largeur à mi-hauteur (FWHM = $w\sqrt{2\ln 2}$), ceci correspond à un diamètre du faisceau laser de 1.53 cm. Dans nos situations expérimentales, le faisceau pompe est diaphragmé (à un diamètre de 1.5 cm) pour sélectionner la fraction centrale du faisceau, d'intensité assez homogène. Cette configuration correspond à une puissance laser incidente sur la cellule de l'ordre de 250 mW. Elle offre l'avantage d'une intensité surfacique que nous supposons uniforme et facilite la modélisation du processus de pompage optique (approximation discutée dans les paragraphes 2.2.1 et 2.5.2). Dans d'autres situations, le diaphragme est éliminé et toute la puissance laser disponible est utilisée. Dans ce cas, le faisceau laser éclaire une plus grande partie de la cellule.

3.5 Système de mesure et acquisition

Le plasma d'hélium-3 est entretenu dans les cellules de pompage optique par une décharge radiofréquence dont l'intensité est modulée (typiquement entre 20 et 30 % de profondeur de modulation) à des fréquences de l'ordre de 100 Hz. La modulation de l'intensité du laser sonde transmise, proportionnelle à l'absorption

du faisceau laser (tant que les absorptions sont relativement faibles), est analysée par une amplification à détection synchrone. La partie modulée ainsi que la valeur moyenne de l'intensité transmise du faisceau sonde sont enregistrées. Les spectres d'absorption sont obtenus du rapport entre le signal de la modulation du faisceau sonde et son intensité moyenne amplifiée. Cette procédure réduit les effets liés à la variation de l'intensité du faisceau pendant les balayages en fréquence de la diode laser sonde et réduit au premier ordre les effets d'épaisseur optique dans la cellule ; les calculs sont détaillés dans l'annexe de [Cou01]. Les spectres d'absorption obtenus sont ensuite analysés selon la procédure décrite dans le chapitre 4. Le rapport signal sur bruit SNR dépend de l'intensité de la décharge ainsi que de la profondeur de sa modulation. Dans nos enregistrements, les SNR sont typiquement supérieurs à 1000.

L'intensité transmise du laser pompe est également enregistrée. Son suivi en cours d'expérience permet d'accorder la fréquence du laser pompe sur une transition atomique. De plus, il sert à étudier l'influence de divers paramètres (telles que la polarisation M , la puissance laser incidente, etc.) sur l'absorption du laser pompe. Les données sont enregistrées dans des fichiers ASCII grâce à un module d'acquisition Data Translation DT9800, connecté à un ordinateur portable via un port USB. La fréquence d'échantillonnage est 10 Hz.

Chapitre 4

Méthode de mesure

Le pompage optique en général est une méthode qui permet d'obtenir en régime stationnaire un état où la répartition des populations dans les sous-niveaux atomiques de l'état fondamental est très éloignée de la répartition de Boltzmann. Le système peut alors acquérir une orientation de laquelle résulte une aimantation macroscopique. Toute grandeur physique dépendant des populations des sous-niveaux peut être utilisée pour détecter et mesurer cette orientation.

Grâce au pompage optique par échange de métastabilité, l'atome d'hélium-3 est polarisé nucléairement dans son état fondamental. Une des méthodes de mesure de la polarisation nucléaire M est la résonance magnétique nucléaire RMN entre les sous-niveaux de l'état fondamental [Lor93]. Toutefois, elle n'est pas très adaptée pour une étude systématique de la dynamique du pompage optique pour diverses raisons : aux basses pressions, la sensibilité des mesures par RMN est faible vu la faible densité des atomes dans l'échantillon. De plus, après chaque impulsion de champ radiofréquence résonnant avec le moment magnétique nucléaire de l'hélium-3 et basculant l'aimantation d'un certain angle, une fraction de la polarisation nucléaire est détruite ; ce qui limite la possibilité de suivre et d'étudier la construction de la polarisation pendant le processus de pompage optique. Finalement, cette technique est fortement affectée par le bruit radiofréquence généré par la décharge excitatrice utilisée pour peupler les atomes d'hélium-3 dans l'état métastable. Ceci constitue une difficulté majeure pour calibrer, de façon absolue et précise, les signaux détectés par RMN.

Une autre méthode pour la détection de la polarisation nucléaire dans l'hélium-3 consiste à mesurer de façon optique le taux de polarisation circulaire de la transition 3^1D-2^1P correspondant à une lumière rouge de $\lambda = 667.8$ nm [Big92]. Dans un plasma d'hélium-3 entretenu par une décharge radiofréquence, les divers états excités peuvent être peuplés par cascade radiative. Une orientation électronique proportionnelle à la polarisation nucléaire y apparaît grâce au couplage hyperfin. Un des niveaux utilisés à cette fin est le niveau 3^1D , de durée de vie de l'ordre de 15 ns, qui se désexcite par émission spontanée en émettant une lumière polarisée circulairement [Pin74]. Une fraction de la polarisation électronique peut être

perdue par collisions ; ce qui fait que l'efficacité de cette méthode de mesure de M dépend de la pression du gaz d'hélium-3. Le rapport entre le taux de polarisation électronique et la polarisation nucléaire a été mesuré pour l'hélium-3 et calibré pour donner des mesures absolues de la polarisation. Une autre variante consiste à étudier la transition 3^3D-2^3P correspondant à une lumière orange de $\lambda = 587.6$ nm [Sto96b]. Toutefois, il est connu que cette méthode de détection par mesure de la fluorescence émise perd son efficacité dès que le champ magnétique appliqué dépasse 10 mTesla à cause des effets de découplage hyperfin dans la cascade radiative [Lal71]. En conséquence, cette méthode de mesure est inappropriée pour notre étude systématique de pompage optique en champ magnétique élevé. À 1.5 Tesla, comme à toutes les valeurs de champ magnétique élevé (> 10 mTesla), la méthode retenue pour la mesure de la polarisation nucléaire repose sur des mesures d'absorption par les atomes métastables d'une lumière laser correspondant à la transition $2^3S_1-2^3P$.

Après un rappel du principe de la méthode de mesure par absorption, nous détaillons la méthode d'analyse utilisée dans nos expériences.

Nous présentons ensuite les méthodes adoptées pour analyser les mesures effectuées à l'état stationnaire (équilibre de Boltzmann ou équilibre entre les atomes et le laser) et nous discutons leur pertinence.

Finalement, nous décrivons les méthodes utilisées pour étudier la dynamique du pompage optique. Nous présentons successivement les deux approches utilisées en mettant en valeur leurs avantages et inconvénients.

4.1 Mesure de la polarisation par absorption d'un faisceau sonde

4.1.1 Principe de la mesure

La méthode optique par absorption d'une lumière monochromatique et polarisée par les atomes métastables permet de mesurer à la fois la densité des atomes métastables n_m et la polarisation nucléaire dans le métastable M^* dont on déduit la polarisation nucléaire dans le fondamental M . Elle repose sur le fait que, sous certaines conditions et en absence de pompage optique et de relaxation, les collisions d'échange de métastabilité couplent fortement la polarisation nucléaire M dans le niveau fondamental 1^1S_0 aux populations des sous-niveaux Zeeman dans l'état 2^3S_1 , de telle sorte que ces populations sont dictées par M (voir paragraphe 2.2.2). Il s'agit d'une extension de la méthode développée dans [Big92] où des expériences de pompage optique en faible champ magnétique sont effectuées.

Les auteurs y mesurent l'absorption par les atomes métastables d'un faisceau sonde transverse au champ magnétique, polarisé linéairement et accordé sur la transition C_9 . Une fois que le rapport des absorptions pour les polarisations π et σ est déterminé, ils en déduisent la valeur de la polarisation nucléaire. Donc, en faible champ magnétique, la méthode de mesure des populations métastables repose sur la sélection des transitions excitées par la polarisation de la lumière, les énergies des sous-niveaux Zeeman étant dégénérées. En champ magnétique élevé, en l'occurrence à 1.5 Tesla, la dégénérescence des sous-niveaux métastables est levée par effet Zeeman. Il est alors beaucoup plus facile d'exciter un certain sous-niveau pour mesurer sa population par un choix judicieux de la polarisation et de la fréquence de la lumière (spectre de l'hélium-3 illustré dans la Fig.2.5).

En pratique, deux signaux d'absorption S_{n1} et S_{n2} sont enregistrés. Ces signaux d'absorption sont proportionnels à la densité d'atomes métastables dans les sous-niveaux sondés. Ils peuvent être écrits sous la forme :

$$S_{n1} = K_{n1}n_m a_{n1} \quad \text{et} \quad S_{n2} = K_{n2}n_m a_{n2} \quad (4.1)$$

où n_m est la densité totale d'atomes métastables, a_{n1} et a_{n2} sont les populations relatives des sous-niveaux sondés, K_{n1} et K_{n2} sont des constantes de proportionnalité dépendant de l'intensité de la transition excitée. En utilisant l'Eq.2.46, le rapport des deux signaux d'absorption devient :

$$\frac{S_{n1}}{S_{n2}} = \frac{K_{n1}}{K_{n2}} e^{\beta \Delta m_F} \quad (4.2)$$

où Δm_F est la différence entre les nombres quantiques du moment angulaire total des deux sous-niveaux sondés. Quand le système n'est pas polarisé (*i.e.* $M = 0$), les six populations relatives des sous-niveaux métastables sont égales entre elles. Le rapport des deux signaux d'absorption, en utilisant les Eqs.4.1, donne à $M = 0$:

$$\frac{S_{n1}^0}{S_{n2}^0} = \frac{K_{n1}}{K_{n2}} \quad (4.3)$$

En combinant les Eqs.4.3 et 4.2, nous obtenons :

$$e^\beta = \left(\frac{S_{n1} S_{n2}^0}{S_{n2} S_{n1}^0} \right)^{1/\Delta m_F} \quad (4.4)$$

La valeur de la polarisation M est ensuite déduite :

$$M = \frac{e^\beta - 1}{e^\beta + 1} \quad (4.5)$$

C'est une technique de mesure absolue de la polarisation, ne nécessitant aucune calibration et valable, en l'absence des processus de relaxation et de pompage

optique, à toutes les pressions et tous les champs magnétiques [Big92], [Cou02]. D'un point de vue pratique, elle requiert le choix d'un "doublet de détection" ou en d'autres termes une paire de raies qui excitent les populations de deux sous-niveaux Zeeman.

L'absorption d'un faisceau laser accordé sur une transition optique A_i-B_j et de faible intensité permet également de déterminer la valeur absolue de la densité d'atomes métastables. Dans un volume élémentaire de la cellule $dV = dS \times dz$ (où l'axe z correspond à la direction de propagation du faisceau laser), le nombre d'atomes métastables dans le sous-niveau A_i est $n_m a_i dV$. Par la suite, $n_m a_i dV$ photons sont absorbés par unité de temps. L'intensité lumineuse absorbée par unité de longueur est donnée par :

$$-\frac{dI}{dz} = \frac{\hbar\omega n_m a_i}{\tau_{ij}} . \quad (4.6)$$

En écrivant une décroissance exponentielle de l'intensité avec la longueur d'absorption z_0 ,

$$I(z) = I(z=0) \exp(-z/z_0) , \quad (4.7)$$

nous obtenons au bout d'une longueur L un facteur de transmission $T = 1 - S$ (S étant le signal d'absorption) tel que :

$$T = \exp(-L/z_0) . \quad (4.8)$$

D'où :

$$\frac{I}{z_0} = \frac{\hbar\omega n_m a_i}{\tau_{ij}} . \quad (4.9)$$

Au final et en utilisant l'Eq.2.31, nous obtenons :

$$n_m = -\frac{m_e \Delta}{\sqrt{\pi} \hbar \alpha f} \frac{\ln T}{L} \frac{1}{a_i T_{ij} \exp(-((\omega - \omega_{ij})/2\pi\Delta)^2)} . \quad (4.10)$$

Dans le cas où plusieurs transitions sont simultanément excitées par un laser monomode de fréquence ω avec des désaccords $(\omega - \omega_k)$ et des éléments T_k de la matrice de transition d'un sous-niveau A_i à un sous-niveau B_j , la généralisation de l'Eq.4.10 donne :

$$n_m = -\frac{m_e \Delta}{\sqrt{\pi} \hbar \alpha f} \frac{\ln T}{L} \frac{1}{\sum a_k T_k \exp(-((\omega - \omega_k)/2\pi\Delta)^2)} . \quad (4.11)$$

La variation de la densité totale des atomes métastables avec la polarisation peut être évaluée en utilisant les formules des Eqs.2.46, 4.2 et 4.5 :

$$\frac{n_m(M)}{n_m(M=0)} = \frac{S_{n1}}{S_{n1}^0} \frac{e^{3\beta/2} + 2e^{\beta/2} + 2e^{-\beta/2} + e^{-3\beta/2}}{6e^{\beta m_{F1}}} . \quad (4.12)$$

avec m_{F1} le nombre quantique relatif au sous-niveau métastable sondé.

4.1.2 Méthode d'analyse

Pour mesurer l'absorption d'un faisceau sonde par les populations des deux sous-niveaux Zeeman, nous balayons la fréquence du laser sonde (paragraphe 3.4.1) à raison de 275 MHz/s pour couvrir le domaine spectral comportant les deux raies de détection, et nous enregistrons l'intensité du faisceau laser après son passage dans la cellule. La partie modulée de l'intensité (suite à la modulation de l'amplitude de la décharge) est analysée par un amplificateur à détection synchrone. Une fois que nous avons enregistré le spectre d'absorption au niveau du doublet de détection, nous ajustons les profils d'absorption des deux raies en profil de Gauss ou de Voigt, selon la pression du gaz. Finalement, nous utilisons les amplitudes des pics d'absorption S_{n1} et S_{n2} pour calculer M (Eq.4.5) et la variation relative de la densité d'atomes métastables (Eq.4.12).

Ajustements des raies d'absorption

Il est connu que le profil des raies d'absorption dépend de la température et de la pression du gaz.

Dans le cas de l'hélium-3, l'élargissement minimal dû à la durée de vie finie du niveau 2^3P (ou élargissement naturel) est $\Gamma/2\pi = 1.626$ MHz, Γ étant le taux de décroissance radiative de l'état 2^3P donné par l'Eq.2.23. Aux fortes pressions, des collisions élastiques et inélastiques contribuent également à l'élargissement de la raie ; cet élargissement est proportionnel à la pression et de l'ordre de 15 MHz/mbar [Blo85] (paragraphe 2.2.1). Le phénomène d'élargissement collisionnel est décrit comme pour l'élargissement naturel par un profil Lorentzien.

D'autre part, dans nos expériences de pompage optique, le gaz d'hélium-3 se trouve à la température ambiante de 300 K. Les raies d'absorption sont élargies par effet Doppler. Il en résulte des raies en forme de Gaussienne de largeur à mi-hauteur $2\Delta\sqrt{\ln 2} = 1.98$ GHz (Eqs.2.25).

Pour les faibles pressions d'hélium-3, les profils d'absorption sont essentiellement Gaussiens étant donné que les élargissements collisionnels peuvent être négligés. Pour les fortes pressions d'hélium-3, il faut tenir compte simultanément de l'effet Doppler et de l'effet des collisions ; le profil des raies résultant est un profil de Voigt V , produit de convolution du profil de Gauss G par le profil de Lorentz L :

$$V = G \otimes L \quad (4.13)$$

Nous illustrons dans la Fig.4.1 comment les spectres expérimentaux dévient progressivement d'une distribution Gaussienne au fur et à mesure que la pression du gaz augmente. Dans nos analyses aux faibles pressions, nous avons ajusté les deux raies du doublet de détection en deux Gaussiennes. Les largeurs à mi-hauteur obtenues par un ajustement de tout le profil (ailes comprises) sont 1.99 ± 0.02 GHz à 1.33 mbar et 2.11 ± 0.06 GHz à 8 mbar. Aux plus fortes pressions, les largeurs

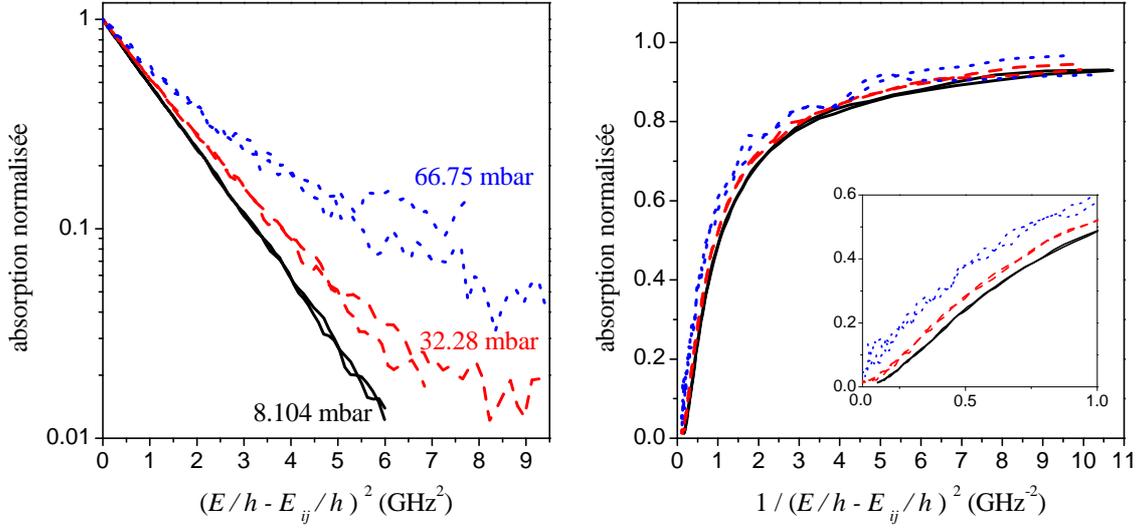


FIG. 4.1 – À gauche, les spectres d’absorption normalisée sont présentés en fonction de $(E/h - E_{ij}/h)^2$ en repère semi-logarithmique. Ils correspondent respectivement aux cellules de 8 mbar, 32 mbar et 67 mbar. Le laser sonde, polarisé σ^+ , est balayé en fréquence au niveau de la transition A_1-B_{10} à 57.75 GHz (voir Fig.2.5). La décroissance linéaire révèle une dépendance gaussienne. - À droite, les spectres sont représentés en fonction de $1/(E/h - E_{ij}/h)^2$. Les pentes à l’origine correspondent aux ailes lorentziennes et augmentent avec la pression.

Gaussiennes ajustées excèdent la largeur Doppler de plus de 15 %. Les raies enregistrées doivent être obligatoirement ajustées en profils de Voigt ou apodisées afin d’éliminer la contribution des ailes Lorentziennes. Les deux variantes donnent des résultats équivalents, *e.g.* à moins de 1 % près dans la cellule de 32 mbar. Toutefois, quand le doublet de détection avoisine une raie intense, les amplitudes des pics d’absorption peuvent être affectées par les ailes de cette dernière. C’est le cas par exemple quand le doublet de détection utilisé comporte les raies isolées A_6-B_{10} et A_5-B_9 à -31.04 GHz et à -27.37 GHz respectivement (voir table 2.1 et Fig.2.5). Les amplitudes des pics d’absorption sont alors surestimées de façon inégale à cause des ailes de la raie f_{4m} et par conséquent les valeurs de M sont erronées. Nous tenons compte alors dans nos ajustements de la contribution de l’aile du profil de Voigt de la raie f_{4m} .

4.2 Mesures expérimentales à l’état stationnaire

Notre étude a comporté des mesures de polarisation en présence du laser pompe accordé sur une transition atomique (*e.g.* lors de la phase de construction de M et donc à M_{stat}) et en son absence (*e.g.* à $M \sim 0$ (à l’équilibre de Boltzmann)

ou lors de la mesure de la relaxation de M due au plasma). Nous commençons par décrire les méthodes d'analyse utilisées en absence du laser pompe et nous discutons leur validité. Ensuite nous discutons leur pertinence quand elles sont effectuées en présence du laser pompe.

4.2.1 En absence du laser pompe

Les collisions d'échange de métastabilité couplent fortement la polarisation nucléaire M dans le fondamental et les populations des sous-niveaux métastables. En absence de pompage optique, elles établissent une distribution de population du type température de spin dans les six sous-niveaux métastables [Nac85b], [Cou02] avec une température de spin $1/\beta$ qui dépend de la polarisation nucléaire M (paragraphe 2.2.2). Les populations relatives obéissent donc aux Eqs.2.39 et 2.46. Nous avons vérifié ceci expérimentalement à $M = 0$ et à M_{stat} en absence du laser pompe.

À 1.5 Tesla et à la température ambiante de 300 K, les polarisations nucléaires, d'après l'équilibre de Boltzmann, sont de l'ordre de 10^{-6} . Nous présentons dans

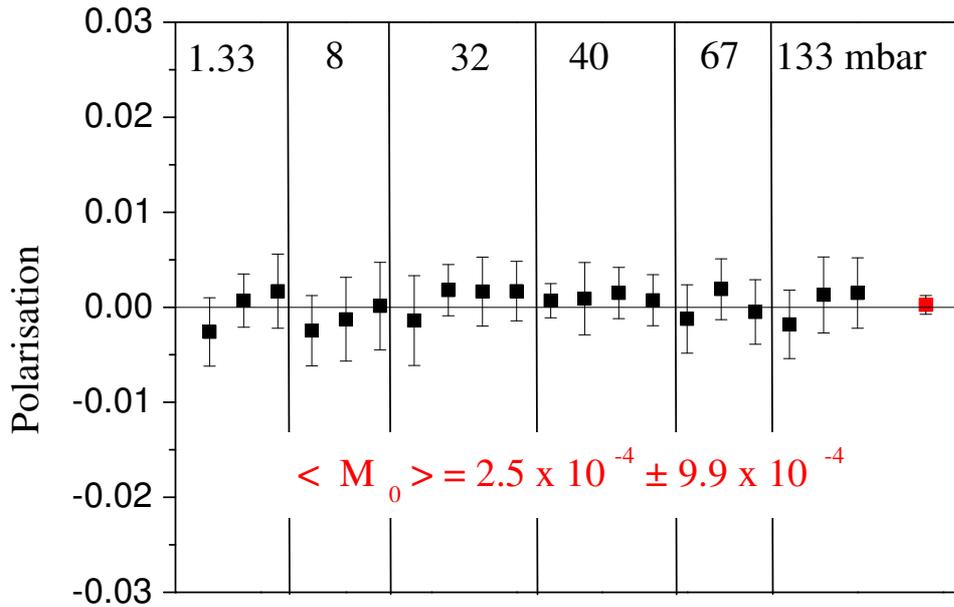


FIG. 4.2 – Dans cette figure, nous représentons les valeurs obtenues de M pour diverses pressions allant de 1.33 mbar à 133 mbar. Le laser sonde est balayé en fréquence pour enregistrer le spectre du doublet de détection à $M = 0$ en absence de pompage optique. La valeur moyenne (symbole le plus à droite du graphe) obtenue à l'équilibre de Boltzmann est $\langle M_0 \rangle = 2.5 \times 10^{-4} \pm 9.9 \times 10^{-4}$.

la Fig.4.2 les résultats typiques de polarisation obtenus pour toutes les pressions

étudiées. En moyennant sur l'ensemble des résultats à diverses pressions du gaz, pour divers rapports de signal sur bruit SNR dans les enregistrements et en utilisant deux doublets de détection différents, la valeur de polarisation nucléaire obtenue est inférieure à 10^{-3} , en accord avec la polarisation d'équilibre de Boltzmann (Eq.1.2).

En outre, ce cas constitue une façon de vérifier expérimentalement la méthode d'ajustement des spectres, précédemment décrite.

Hors équilibre de Boltzmann et en absence de tout processus de relaxation affectant les populations des atomes métastables, il est possible de retrouver par un calcul numérique reposant sur la distribution de température de spin les spectres enregistrés. Un exemple d'enregistrement à 8 mbar est présenté dans la Fig.4.3. En absence de laser pompe (tracé en traits pleins), le spectre d'absorption du fais-

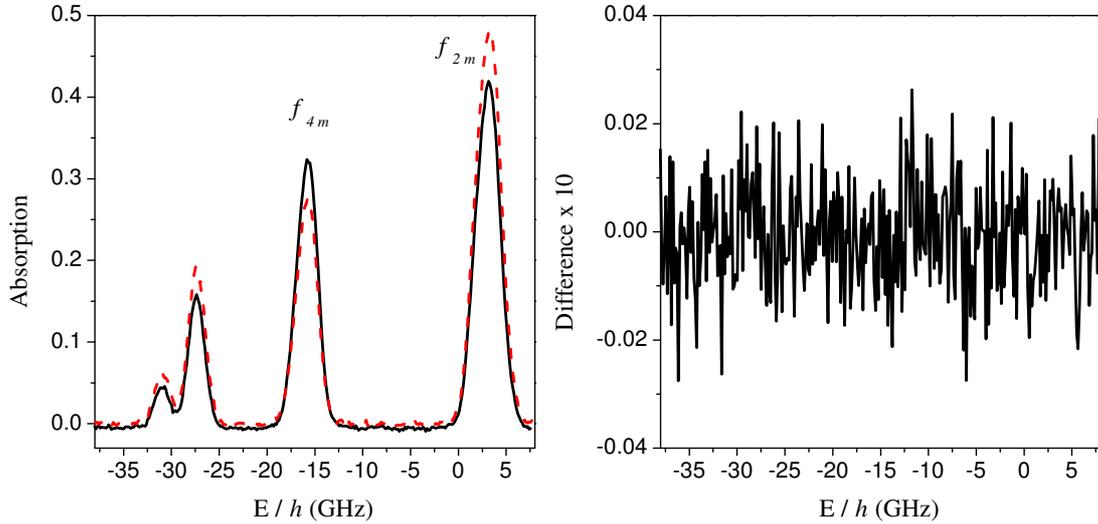


FIG. 4.3 – À gauche, spectres d'absorption du faisceau sonde (polarisé σ^-) enregistrés à $M_{stat} = 0.512$ en absence (tracé en traits pleins) et en présence (tracé en traits pointillés) du laser pompe accordé sur la transition f_{4m} et de puissance incidente 250 mW. Les enregistrements sont effectués dans une cellule de 8 mbar. - À droite, courbe des résidus correspondant à l'écart entre le spectre expérimental enregistré en absence du laser pompe (tracé en traits pleins de la figure de droite) et un ajustement en supposant une distribution de population en température de spin.

ceau sonde peut être ajusté par un spectre où les populations a_i obéissent à une distribution en température de spin. Le rapport des amplitudes des signaux d'absorption du faisceau sonde relatives aux populations de deux sous-niveaux Zeeman est utilisé pour déterminer M . La courbe des résidus correspond à l'écart entre le spectre expérimental enregistré et un ajustement en supposant une distribution

de population en température de spin. Elle illustre la validité et la robustesse de la distribution en température de spin en absence de tout processus de relaxation d'efficacité comparable à celle des collisions d'échange de métastabilité.

Nous considérons à titre d'exemple l'effet de γ_S^{rel}/γ_e sur la distribution des populations des six sous-niveaux métastables A_1 à A_6 et ce pour différentes valeurs de M . La relaxation des atomes métastables par diffusion vers les parois de la cellule (temps de diffusion de l'ordre de 0.75×10^{-3} s/mbar) serait telle que $\gamma_S^{rel}/\gamma_e = 2 \times 10^{-4}$ à 1.33 mbar et $\gamma_S^{rel}/\gamma_e = 5.4 \times 10^{-6}$ à 8 mbar. Le calcul numérique effectué en absence de laser pompe montre que les processus de relaxation affectent les populations d'une même paire de sous-niveaux de façon comparable (Fig.4.4). Ceci est dû, comme expliqué dans le paragraphe 2.3, au fait que les collisions d'échange de métastabilité couplent efficacement les sous-niveaux d'une même paire. Dès lors, toute perturbation due au faisceau pompe (comme illustré dans le paragraphe 4.2.2) ou au processus de relaxation se manifeste par un transfert de population inter-paires tout en laissant le rapport des populations intra-paire régi par la distribution de température de spin. Dans notre configuration expérimentale et pour des pompages menant à des polarisations $M > 0$ (paragraphe 5.1), les populations des sous-niveaux de la paire (A_5, A_6) sont sondées, alors que pour des pompages menant à des $M < 0$, celles relatives à la paire de sous-niveaux (A_1, A_2) le sont. Par conséquent, dans les cas les moins favorables *i.e.* correspondant à $\gamma_S^{rel}/\gamma_e \sim 10^{-3}$, les mesures de polarisation sont affectées à moins de 0.5 % près. Nous en concluons que les mesures de polarisation, effectuées en absence de laser pompe et déduites des rapports des signaux d'absorption de deux sous-niveaux appartenant à une même paire sont peu sensibles aux effets de relaxation intervenant dans le niveau métastable (Figs.5.2 et 5.1).

4.2.2 En présence du laser pompe

En plus du spectre d'absorption enregistré en absence du laser pompe, la Fig.4.3 illustre un exemple de spectre en présence du laser pompe et pour une même polarisation M correspondant à l'équilibre entre les atomes et le laser pompe. Dans cet exemple de pompage, le laser pompe vide les populations des sous-niveaux A_1 à A_4 et peuple les sous-niveaux A_5 et A_6 ; sa présence perturbe la distribution des populations et modifie fortement le spectre d'absorption du faisceau sonde (tracé en traits pointillés) en comparaison avec le spectre enregistré en absence de laser pompe. Ceci s'explique par le fait que lors du processus de pompage optique, l'absorption du laser pompe par les sous-niveaux excités tend à surpolariser la population d'un ou plusieurs sous-niveaux métastables. Ce processus (qui dépend de l'intensité lumineuse absorbée) est en "compétition" avec les collisions d'échange de métastabilité qui couplent les atomes entre eux (processus dépendant de la pression du gaz). Dès lors, en présence d'un laser pompe dépeuplant un ou plusieurs sous-niveaux Zeeman, les populations a_i

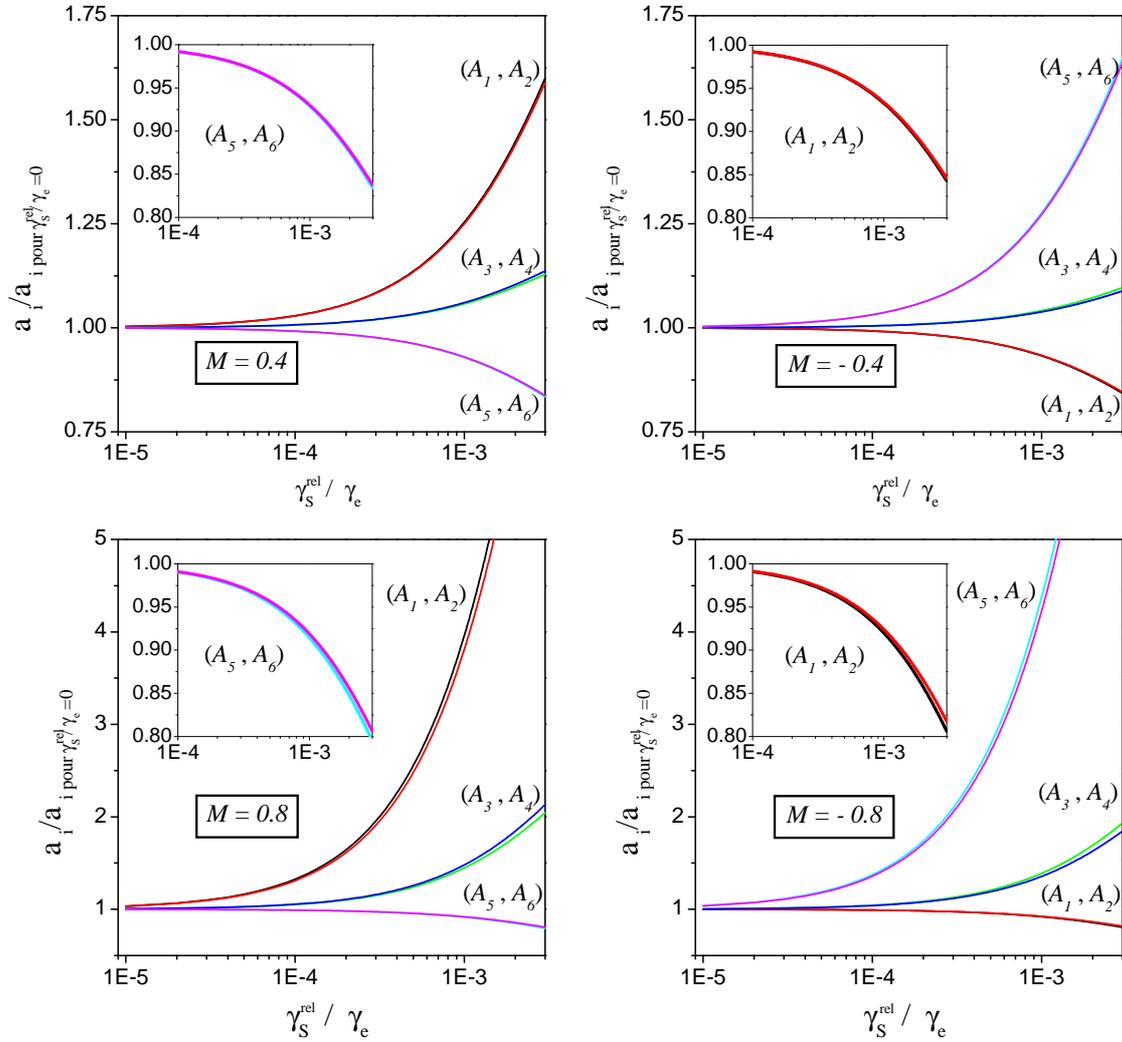


FIG. 4.4 – Variations des rapports des populations relatives a_i des six sous-niveaux métastables en fonction de γ_S^{rel}/γ_e en absence de laser pompe et à diverses valeurs de M . Les populations sont rapportées à leurs valeurs respectives correspondant à $\gamma_S^{rel}/\gamma_e = 0$. Les populations des sous-niveaux de la paire (A_5, A_6) sont sondées pour des pompages menant à des polarisations $M > 0$, alors que pour des pompages menant à des $M < 0$, celles relatives à la paire (A_1, A_2) le sont.

des sous-niveaux métastables ne peuvent ni satisfaire l'Eq.2.46 ni obéir à la distribution de température de spin [Abb05].

La Fig.4.5 illustre comment les processus de surpolarisation affectent les populations relatives des sous-niveaux métastables. Nous y représentons, en fonction du rapport γ_p/γ_e entre le taux de pompage et le taux de collisions d'échange de métastabilité, la variation relative des populations par rapport à la distribution en température de spin (*i.e.* $\gamma_p/\gamma_e = 0$). Ces calculs numériques (modèle à 7 populations) effectués pour divers pompages et diverses polarisations nucléaires montrent que les populations d'une même paire de sous-niveaux sont affectées de façon comparable; ce qui, encore une fois, montre que les perturbations affectant les populations des sous-niveaux métastables se traduisent par un transfert de population entre les paires tout en laissant le rapport des populations à l'intérieur d'une même paire régi par la distribution de température de spin. Expérimentalement, nous avons systématiquement vérifié, et ce à toutes les pressions, que le rapport des populations des sous-niveaux de m_F adjacents demeure inchangé (les sous-niveaux A_5 et A_6 quand le laser pompe est accordé sur la transition f_{4m} ou f_{2p} , ou encore les sous-niveaux A_1 et A_2 quand le laser pompe est accordé sur la transition f_{2m} ou f_{4p}). Ces observations expérimentales ainsi que les calculs numériques confortent les hypothèses sur lesquelles repose notre modèle à 6 populations (Eq. 2.54).

Par conséquent, l'utilisation de la méthode d'analyse décrite dans le paragraphe 4.1.1 reste valable pour les mesures de M en présence d'un laser pompe à l'état stationnaire et pendant sa dynamique de construction. Encore une fois, il suffit de sélectionner un doublet de détection qui excite deux sous-niveaux métastables différents de ceux excités par la raie de pompage et qui appartiennent à une même paire (Figs.5.2 et 5.1).

4.3 Mesures expérimentales dynamiques

Dans cette section, nous décrivons les méthodes utilisées pour analyser les données expérimentales en vue d'une étude systématique de la dynamique du pompage optique. Nous détaillons successivement les deux approches utilisées en mettant en valeur leurs principaux avantages et inconvénients.

4.3.1 Mesure de la population d'un sous-niveau métastable

En absence du laser pompe, il est possible de suivre en continu la relaxation de la polarisation à partir d'une mesure d'absorption sondant la population d'un sous-niveau donné sous réserve d'hypothèses concernant la densité d'atomes

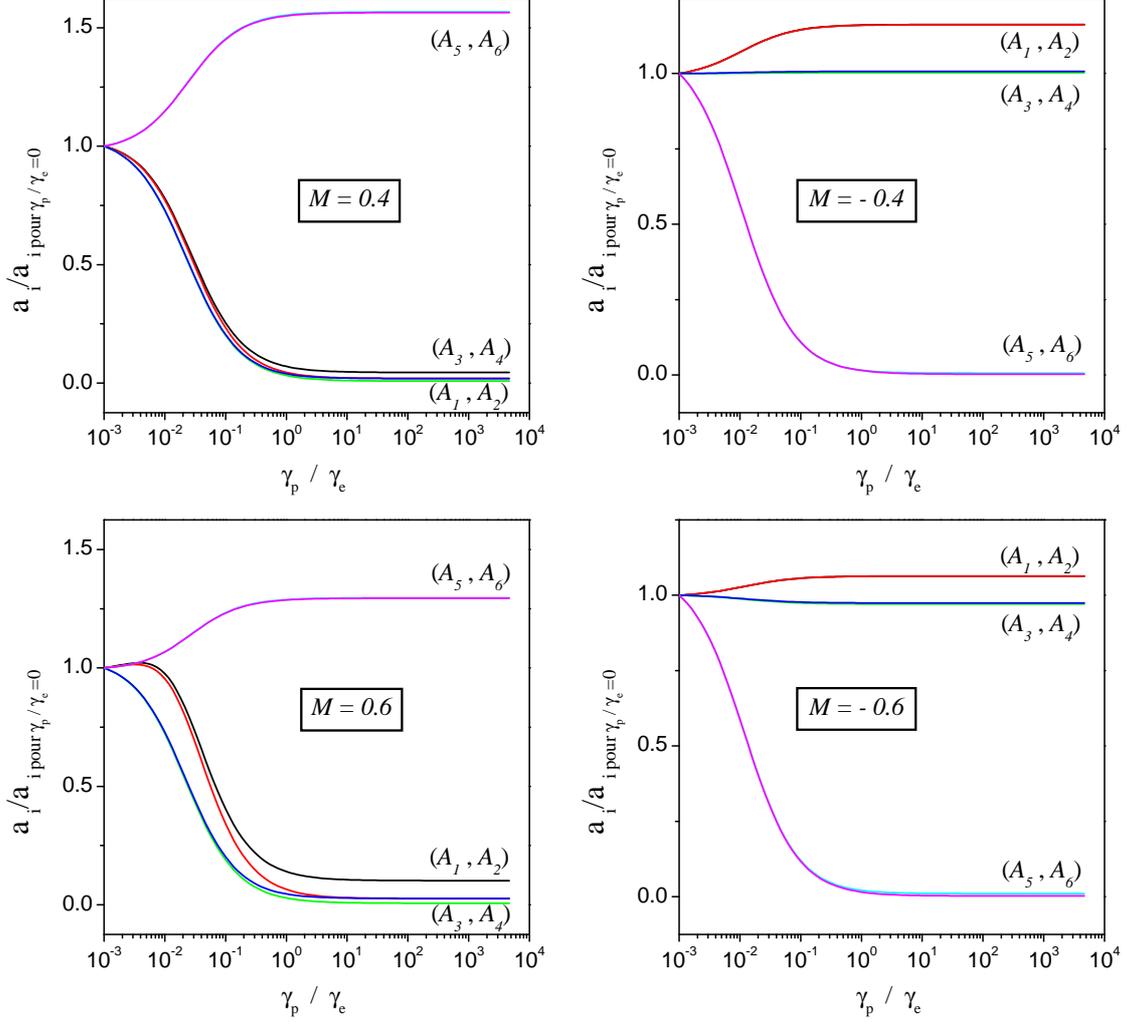


FIG. 4.5 – Variations des rapports des populations relatives a_i des six sous-niveaux métastables en fonction de γ_p/γ_e à diverses valeurs de M et à 8 mbar. Les populations sont rapportées à leurs valeurs respectives correspondant à $\gamma_p/\gamma_e = 0$. Les populations des sous-niveaux de la paire (A_5, A_6) sont sondées pour des pompages menant à des polarisations $M > 0$ (comme un pompage multi-transition f_{4m}), alors que pour des pompages menant à des $M < 0$ (comme un pompage multi-transition f_{2m}), celles relatives à la paire (A_1, A_2) le sont.

métastables. En pratique, il s'agit d'accorder le laser sonde sur une raie simple excitant par exemple le sous-niveau A_1 ou A_5 de m_F respectifs $-3/2$ ou $3/2$ et d'enregistrer la variation temporelle du signal d'absorption. À 1.5 Tesla, ceci est possible en accordant le laser sonde polarisé σ^+ sur la transition A_1-B_{10} ou sur la transition A_5-B_9 si le laser est polarisé σ^- . Une fois l'enregistrement de la variation du signal d'absorption S est effectué, il faut convertir le signal enregistré en polarisation nucléaire M .

Nous considérons le cas où le laser sonde excite la population du sous-niveau de m_F égal à $3/2$. En combinant les Eqs.2.46 et 4.1 à M et à $M = 0$, il est possible de convertir la variation de l'absorption en polarisation. En supposant par exemple que la densité de métastables ne varie pas avec la polarisation, nous obtenons :

$$\frac{S}{S^0} = \frac{6e^{3\beta/2}}{e^{3\beta/2} + 2e^{\beta/2} + 2e^{-\beta/2} + e^{-3\beta/2}} \quad (4.14)$$

Il suffit simplement d'inverser l'équation précédente pour trouver la température de spin et par suite la polarisation nucléaire. L'Eq.4.14 peut être facilement ramenée sous la forme d'une équation du troisième degré et résolue en utilisant la formule de Cardan. Nous obtenons alors :

$$e^{-\beta} = \left(-\frac{q}{2} + \sqrt{\frac{q^2}{4} + \frac{p^3}{27}} \right)^{1/3} - \left(\frac{q}{2} + \sqrt{\frac{q^2}{4} + \frac{p^3}{27}} \right)^{1/3} - \frac{2}{3},$$

où $p = 2/3$ et $q = 7/27 - 6S^0/S$. De même, il est possible de convertir un signal d'absorption proportionnel à la population d'un sous-niveau de m_F égal à $-3/2$. Un calcul analytique peut être également entrepris pour les populations des sous-niveaux de m_F égal à $1/2$ et $-1/2$. Dans la Fig.4.6, la polarisation M est représentée en fonction de S/S^0 dans les quatre cas correspondant à la mesure des populations des sous-niveaux de m_F égal à $\pm 1/2$ et $\pm 3/2$. Les populations des sous-niveaux de $m_F = \pm 3/2$ varient de façon monotone avec la polarisation ; ce qui n'est pas le cas des populations relatives aux sous-niveaux de $m_F = \pm 1/2$.

4.3.2 Mesure de deux populations métastables

La méthode précédente peut être utilisée pour mesurer l'évolution de M sous réserve d'hypothèses quant à la variation de la densité d'atomes métastables et en absence de perturbations importantes dues au laser pompe. Nous décrivons ici une méthode plus générale qui permet de remonter à la fois à M et à n_m comme décrit dans le paragraphe 4.1.1. Cette méthode s'inspire de celle utilisée en faible champ magnétique où grâce à la polarisation du faisceau sonde, deux combinaisons de populations sont simultanément déterminées [Big92]. Ce qui n'est évidemment pas possible en champ magnétique intense à cause de l'effet Zeeman. Par ailleurs, elle utilise le fait que le rapport des populations des sous-niveaux appartenant à

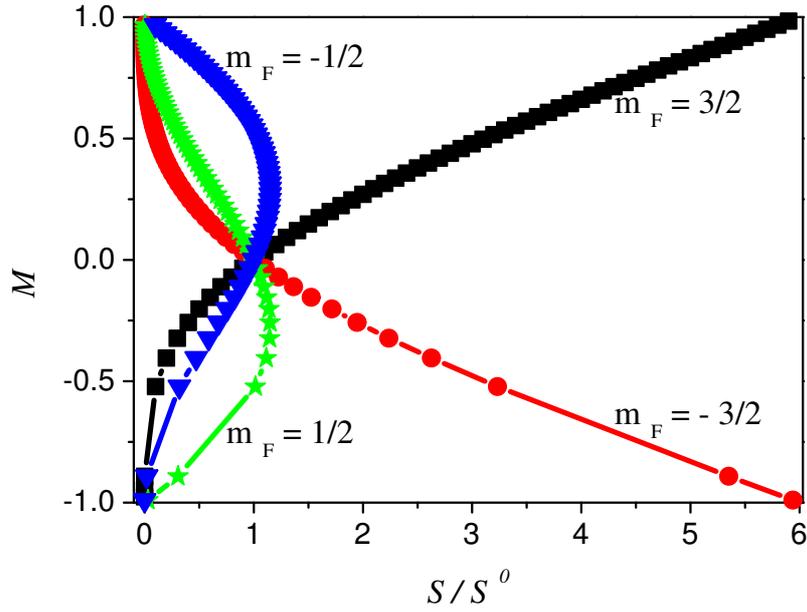


FIG. 4.6 – Variation de la polarisation M avec le signal d’absorption S sondant la population des sous-niveaux de m_F respectifs $-3/2$ (cercles), $3/2$ (carrés), $-1/2$ (triangles) et $1/2$ (étoiles). S^0 et S sont respectivement les signaux d’absorption d’une lumière laser par les atomes métastables dans le sous-niveau en question, à $M = 0$ et pour $-1 \leq M \leq +1$.

une même paire n’est pas affecté par la présence de la pompe.

La méthode utilisée consiste à balayer plusieurs fois la fréquence du laser sonde au niveau du doublet de détection pendant l’évolution de M sur des échelles de temps beaucoup plus courtes que celles caractéristiques des processus de pompage et de relaxation. Dans nos expériences, le laser sonde est balayé en fréquence à une vitesse de l’ordre de 1 GHz/s, une fois dans le sens des fréquences croissantes puis dans le sens des fréquences décroissantes et ainsi de suite. Un exemple d’enregistrement de la phase de construction de la polarisation nucléaire dans la cellule de 8 mbar est reproduit dans la Fig.4.7. Les spectres d’absorption sont obtenus en balayant la fréquence du laser sonde polarisé σ^- pour exciter les transitions A_5-B_9 et A_6-B_{10} correspondant respectivement aux fréquences -27.37 GHz et -31.04 GHz (Fig.2.5). Le laser pompe accordé sur la transition f_{4m} et de puissance incidente 250 mW est appliqué à $t = 100$ s. Les “enveloppes” observées sont les amplitudes des signaux d’absorption relatifs aux deux sous-niveaux métastables et utilisées pour déterminer M . Nous observons ici que la population du sous-niveau $m_F = 3/2$ augmente avec la polarisation, alors que celle relative au sous-niveau $m_F = 1/2$ commence par augmenter puis diminue, comme prévu d’après les résultats de la Fig.4.6. Un inconvénient de cette méthode est que l’évolution de M

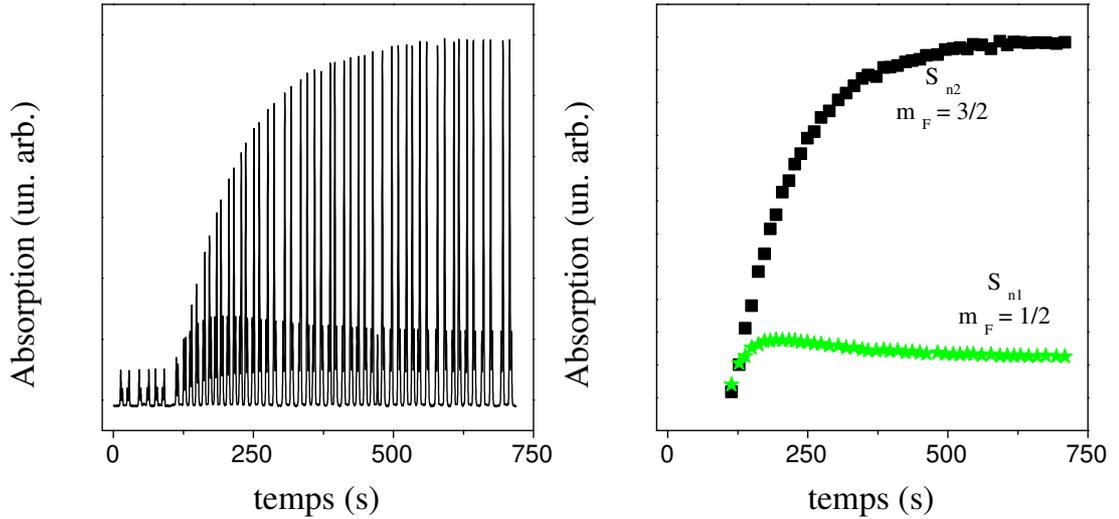


FIG. 4.7 – Signaux d’absorption du faisceau sonde obtenus en balayant alternativement la fréquence du laser sonde au niveau du doublet de détection σ^- (transitions A_5-B_9 et A_6-B_{10}). Cet exemple est enregistré pendant la phase de construction de la polarisation nucléaire. Le laser pompe accordé sur la transition f_{4m} et de puissance incidente 250 mW est appliqué à $t = 100$ s. Le pompage est effectué dans la cellule de 8 mbar. - À gauche, tous les spectres obtenus pendant la construction de M par pompage optique sont présentés. - À droite, les amplitudes des pics d’absorption sont représentées en fonction du temps. Ces amplitudes sont celles des signaux d’absorption S_{n1} et S_{n2} , proportionnels aux populations des sous-niveaux A_5 ($m_F = 3/2$) (carrés) et A_6 ($m_F = 1/2$) (étoiles), et elles sont utilisées pour remonter à M .

est échantillonnée dans le temps. De plus, pendant l'enregistrement de l'évolution de M , les deux signaux d'absorption relatifs aux deux sous-niveaux métastables sondés sont décalés temporellement; un traitement préalable des données enregistrées ou données brutes est nécessaire. Un exemple de traitement est illustré dans la Fig.4.8.

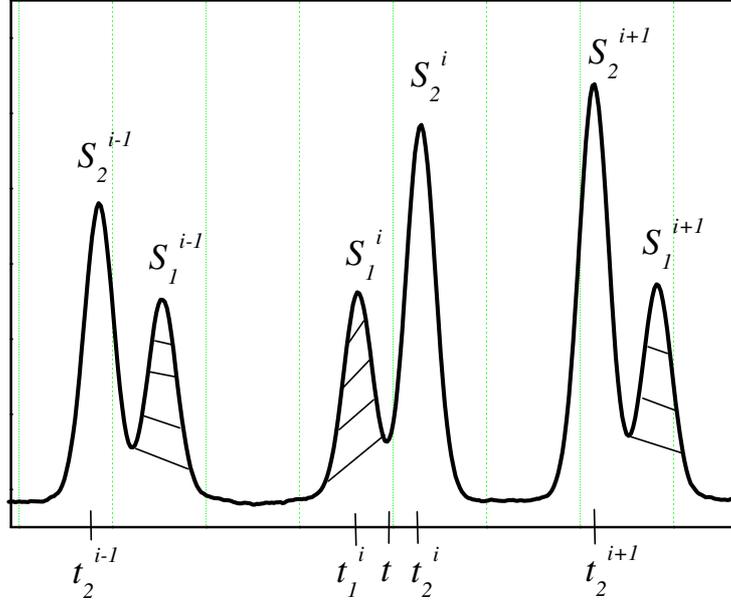


FIG. 4.8 – Agrandissement d'une zone temporelle de la Fig.4.7 entre $t = 150$ et 180 s. S^{i-1} , S^i et S^{i+1} sont les amplitudes relatives du signal d'absorption à t^{i-1} , t^i et t^{i+1} correspondant à un des deux pics du doublet de détection. Les zones hachurées sont relatives au deuxième pic. Les indices 1 et 2 permettent de distinguer les deux pics. Après une interpolation linéaire (voir texte), la valeur moyenne de la polarisation est déduite à l'instant moyen t .

Nous considérons le doublet de détection i ; les amplitudes respectives des deux pics S_1^i et S_2^i sont décalés temporellement de $\Delta t = t_2^i - t_1^i$. Avant d'utiliser leurs valeurs respectives pour calculer M à l'instant moyen t , chacun de ces deux signaux d'absorption est estimé au premier ordre par une interpolation linéaire à l'instant t en utilisant :

$$S(t) = S^i + \frac{t^i - t}{t^{i+1} - t^i} (S^i - S^{i+1}) \quad (4.15)$$

S^i et S^{i+1} étant les amplitudes du signal d'absorption S aux instants t^i et t^{i+1} respectivement. Les interpolations linéaires peuvent être faites entre t^{i-1} et t^i ou entre t^i et t^{i+1} . Les deux façons nous permettent d'encadrer les valeurs des signaux d'absorption et par la suite de déterminer un minorant et un majorant pour M .

Nous prenons ensuite la valeur moyenne des deux bornes de l'encadrement comme valeur de M à l'instant t ; l'erreur sur M sera inférieure à $\Delta M = \delta M/2$, δM étant l'écart entre les deux bornes de l'intervalle d'encadrement. Compte tenu de ces divers traitements, nous obtenons pour l'exemple présenté dans la Fig.4.7 les résultats présentés dans la Fig.4.9. Les incertitudes statistiques sont inférieures

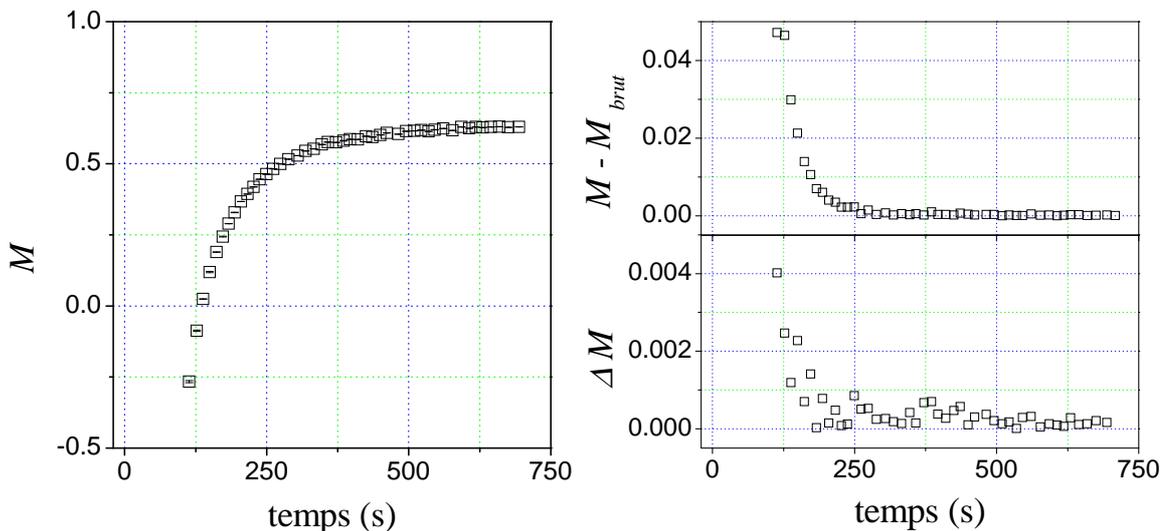


FIG. 4.9 – Exemple de construction de la polarisation nucléaire M par pompage optique à 1.5 Tesla. Le laser pompe est accordé sur la transition f_{4m} et appliqué à $t = 100$ s. Ce pompage est effectué dans la cellule de 8 mbar et correspond à l'enregistrement présenté dans la Fig.4.7. Le laser sonde est balayé en fréquence au niveau du doublet de détection σ^- (transitions A_5-B_9 et A_6-B_{10}). - À gauche, l'évolution temporelle de M est représentée. Les valeurs de polarisation M sont obtenues après une estimation par interpolation linéaire des amplitudes des deux pics du doublet de détection. Les barres d'erreur correspondent aux incertitudes statistiques. - À droite, en haut, nous représentons les écarts entre les valeurs de M : celles correspondant aux interpolations linéaires et celles correspondant aux données enregistrées (M_{brut}). En bas, nous représentons les incertitudes méthodologiques ΔM .

aux incertitudes méthodologiques. De plus, les incertitudes méthodologiques sont importantes en début de cinétique et elles diminuent fortement dès lors que la polarisation varie peu. Les effets de la variation temporelle de M susceptibles de déformer les pics d'absorption sont négligés dans nos traitements. La distorsion des pics est probablement compensée en première approximation par les balayages en fréquence alternés du laser sonde. Ceci étant, cet exemple d'enregistrement avec ses incertitudes méthodologiques illustre les cas extrêmes ; pour des dynamiques de relaxation de M sous l'effet du plasma ou pour des cinétiques de pompage utilisant

des puissances laser inférieures à 250 mW, les incertitudes méthodologiques sont typiquement réduites d'un facteur 2 à 5.

En dynamique de pompage : t_b

Nous visons grâce aux mesures de dynamique de pompage à déterminer expérimentalement, en plus de M_{stat} , le terme source de l'Eq.2.61 à $M = 0$. Nous pouvons être amenés à croire que l'évolution de M suit une exponentielle ; mais ceci ne correspond pas à la réalité. En effet, nous avons observé dans nos expériences que M se construit de façon beaucoup plus complexe ; son évolution temporelle présente un comportement relativement rapide au voisinage de $M = 0$ et progressivement ralenti au fur et à mesure que M tend vers M_{stat} . Des ajustements exponentiels effectués localement, dans les zones autour de $M = 0$ et de $M = M_{stat}$, donnent des constantes de temps présentant des écarts allant de 20 % à 50 %. Les particularités de cette cinétique de pompage se résument par :

- un caractère non-exponentiel de l'ensemble de la cinétique de pompage
- un comportement quasi-exponentiel en fin de dynamique de pompage

quelles que soient les conditions de pompage.

Pour remédier à cette complexité et pouvoir extraire $dM/dt_{(M=0)}$, nous procédons comme suit : Nous séparons l'évolution de M en deux principales zones, l'une autour de $M = 0$ et l'autre en fin de pompage. Un premier ajustement exponentiel en fin de dynamique permet de déterminer la valeur asymptotique de la polarisation, en équilibre avec le laser pompe M_{stat} . Étant donné M_{stat} , un ajustement exponentiel dans la zone autour de $M = 0$ permet de trouver une constante de temps caractéristique que nous notons t_b . La Fig.4.10 illustre un exemple typique de construction de M par pompage optique. Nous y représentons en échelle semi-logarithmique l'évolution de $(M_{stat} - M)$ en fonction du temps ainsi que l'ajustement exponentiel autour de $M = 0$. Dans cet exemple, nous obtenons $t_b = 71.5 \pm 2.1$ s. Enfin, nous déterminons $dM/dt_{(M=0)}$ en écrivant :

$$\left(\frac{dM}{dt} \right)_{M=0} = \frac{M_{stat}}{t_b} \quad (4.16)$$

Même si nous ne disposons pas de démonstration qui valide l'approche utilisée, nous pouvons nous convaincre de son utilité par une simulation numérique. Nous considérons pour cela l'évolution temporelle d'une grandeur Y selon une loi arbitraire qui mime l'évolution de M . Y croît vers une valeur asymptotique Y_∞ telle que autour de $Y = 0$, cette croissance est rapide et puis au fur et à mesure que $Y \rightarrow Y_\infty$, la dynamique de croissance se ralentit d'un facteur typique compris entre 20 et 50 %. Nous décrivons cette loi par une exponentielle dont la constante de

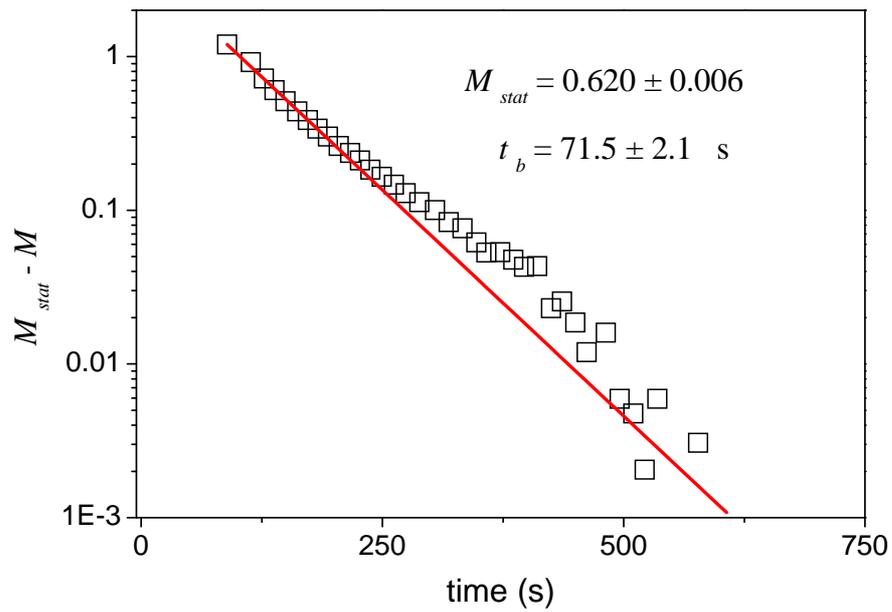


FIG. 4.10 – Écart de M par rapport à la polarisation d'équilibre M_{stat} pour l'enregistrement présenté dans les Figs.4.7 et 4.9. Les données expérimentales sont représentées par les carrés creux. La courbe en traits pleins représente un ajustement exponentiel des données expérimentales autour de $M = 0$ avec $M_{stat} = 0.620 \pm 0.006$; cet ajustement donne $t_b = 71.5 \pm 2.1 \text{ s}$.

temps τ se raccourcit en allant de $Y = 0$ à $Y = Y_\infty$:

$$\begin{aligned} Y(t) &= Y_\infty(1 + ke^{-x/\tau(t)}) \\ \tau(t) &= \tau_\infty \left(1 - \frac{Y_\infty - Y(t)}{cY_\infty}\right) \end{aligned} \quad (4.17)$$

Une trentaine de points est utilisée pour représenter la loi arbitraire d'évolution

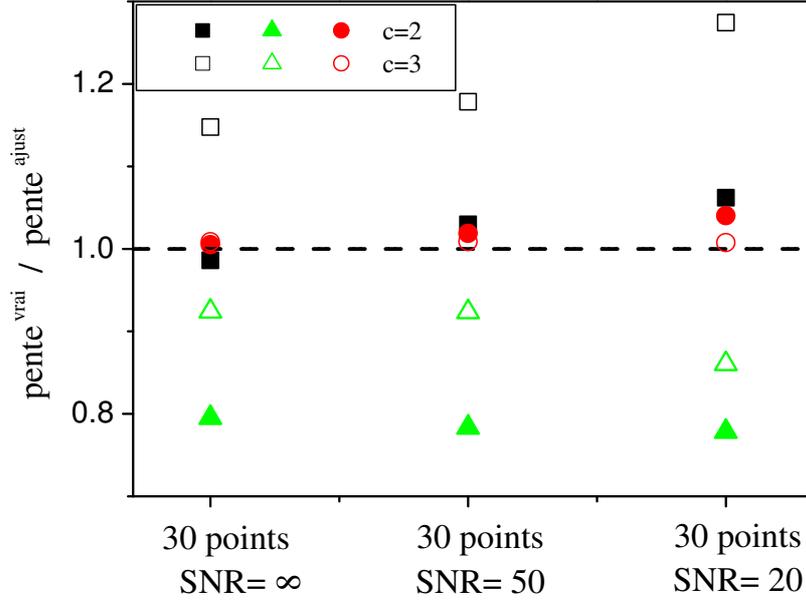


FIG. 4.11 – Dans cette figure, nous représentons les résultats de la simulation numérique décrite par les Eqs.4.17. Les rapports entre la vraie valeur de dY/dt à $Y = 0$ et les résultats des différentes approches d'ajustements y sont présentés pour deux valeurs de la constante c des Eqs.4.17 ($c = 2$ et 3) et pour $Y_\infty = 0.6$. Les carrés, triangles et cercles correspondent respectivement aux approches d'ajustements (i), (ii) et (iii) décrites dans le texte.

de Y (expérimentalement, environ trente points sont utilisés pour déterminer l'évolution de M). Nous procédons ensuite à plusieurs tentatives d'ajustements afin de retrouver la pente à l'origine $dY/dt_{(Y=0)}$. Trois approches d'ajustement s'avèrent pertinentes :

- i*- un ajustement exponentiel de l'ensemble des données
- ii*- un ajustement exponentiel autour de $Y = 0$ en gardant les deux paramètres (la constante de temps et la valeur asymptotique) libres
- iii*- deux ajustements consécutifs : un premier ajustement au niveau de l'asymptote permet de trouver la valeur asymptotique et le second ajustement autour de $Y = 0$, tout en imposant l'asymptote, détermine la constante de temps. Le rapport entre la valeur asymptotique et la constante de temps donne la pente à l'origine.

Nous comparons ensuite les résultats des trois méthodes d'ajustement à la valeur connue de dY/dt à $Y = 0$, pour diverses valeurs de c et M en ajoutant dans certaines situations des bruits Gaussiens de l'ordre de quelques % sur les données. Pour $c = 2$ (respectivement 3), la constante de temps augmente de près d'un facteur 2 (respectivement 1.5) en allant de τ_0 à τ_∞ . La méthode d'ajustement (iii) s'avère être la meilleure approche à adopter ; elle permet de retrouver les résultats corrects de pente à l'origine à moins de quelques % près comme le montrent les résultats de la Fig.4.11.

En dynamique de relaxation : $T_{1\ dech}$

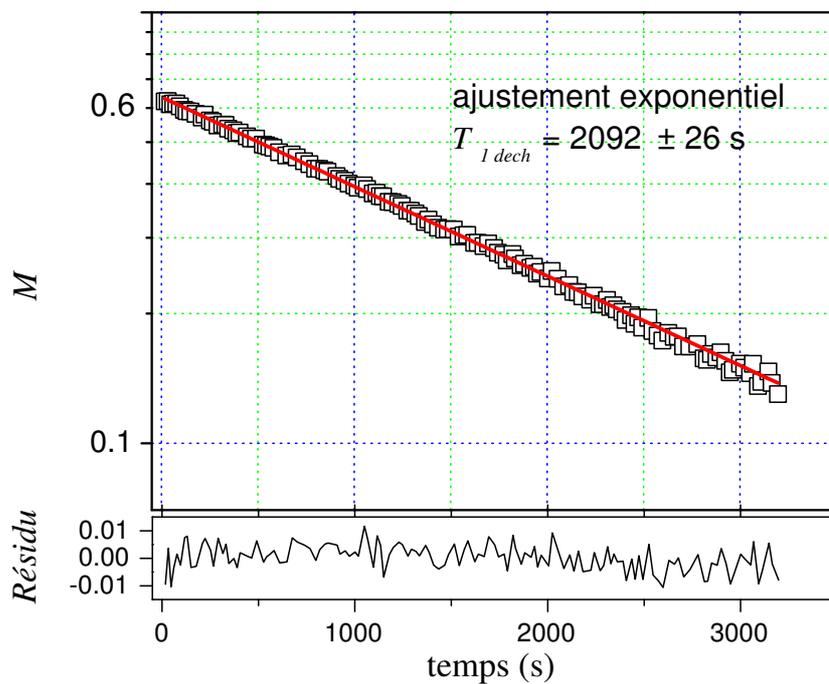


FIG. 4.12 – Exemple de mesure de la relaxation de la polarisation nucléaire M en présence de plasma dans une cellule de 8 mbar. L'évolution de M est obtenue en balayant la fréquence du laser sonde au niveau du doublet de détection σ^- (transitions A_5-B_9 et A_6-B_{10}). La décharge radiofréquence utilisée est la même que celle pour les exemples présentés dans les Figs.4.7 et 4.9. Les données expérimentales sont représentées par les carrés creux. La courbe en traits pleins représente un ajustement exponentiel de l'ensemble des points. Nous traçons également la courbe des résidus traduisant les écarts entre les données expérimentales et l'ajustement exponentiel. La constante de temps résultante est $T_{1\ dech} = 2092 \pm 26$ s.

La polarisation nucléaire M peut être détruite par divers processus physiques, en présence du plasma entretenu par la décharge radiofréquence (paragraphe 2.2.3).

Pour mesurer son temps de relaxation longitudinale en présence de plasma, nous procédons comme suit. Nous commençons par polariser l'échantillon jusqu'à atteindre l'état stationnaire correspondant à l'équilibre entre le laser et les atomes. Ensuite, nous coupons le laser pompe et nous étudions l'évolution de M sous l'effet de la décharge. Un exemple de mesure expérimentale dans une cellule de 8 mbar est illustré dans la Fig.4.12. La variation de M est ajustée par une exponentielle qui nous donne le temps de relaxation longitudinale noté T_1_{dech} . Dans ce cas, $M_{stat} = 0.62$ et nous trouvons $T_1_{dech} = 2092 \pm 26$ s.

Chapitre 5

Résultats expérimentaux du pompage optique à 1.5 Tesla

Dans ce chapitre, nous présentons les résultats expérimentaux du pompage optique à 1.5 Tesla. Ces résultats nous ont permis de déterminer les conditions expérimentales favorables au pompage optique en termes de polarisation stationnaire atteinte M_{stat} et/ou temps de construction de la polarisation t_b . L'analyse quantitative des résultats expérimentaux, leur interprétation et leur confrontation aux prédictions des modèles numériques sont présentées dans le chapitre 6.

Dans un premier temps, nous présentons une compilation des résultats obtenus à 1.5 Tesla en variant divers paramètres expérimentaux.

Nous commençons par décrire les conséquences du choix de la raie atomique pour le pompage optique à 1.5 Tesla. Nous présentons pour chaque configuration de pompage les raies sondes retenues pour mesurer la polarisation (chapitre 4) et les résultats du pompage optique dans les régimes des faibles et fortes pressions.

Ensuite, nous discutons les conséquences du choix du plasma entretenu dans la cellule à toutes les pressions du gaz. Nous tenons compte pour cela des effets de l'intensité de la décharge radiofréquence, de la géométrie et disposition des électrodes excitatrices et de la géométrie des cellules.

Puis, nous présentons des expériences qui illustrent la dépendance des résultats du pompage vis à vis de la puissance laser incidente sur la cellule.

Dans un second temps, nous présentons les résultats marquants du pompage optique à 1.5 Tesla et aux pressions élevées. Nous discutons leur importance et leurs intérêts pratiques pour les applications d'imagerie médicale.

5.1 Effets de la raie atomique à 1.5 Tesla

À 1.5 Tesla, le spectre d'absorption de l'hélium-3 avec une lumière polarisée σ^- ou σ^+ comporte quatre raies intenses f_{4m} , f_{2m} , f_{4p} et f_{2p} (voir Figs.2.4 et 2.5), chacune étant composée de plusieurs transitions atomiques comme détaillé dans le paragraphe 2.1.3. Le spectre comporte également des raies n'excitant qu'une seule transition atomique (pompage mono-transition); les plus intenses sont A_6-B_{10} (-31.04 GHz), A_5-B_9 (-27.36 GHz), A_2-B_9 (52.46 GHz) et A_1-B_{10} (57.75 GHz). Nous présentons ci-après les schémas de pompage étudiés à 1.5 Tesla, en indiquant les raies sondes utilisées dans chaque cas pour mesurer la polarisation. Ensuite, comme l'excitation de ces diverses raies atomiques a des conséquences différentes sur les résultats du pompage optique, nous comparons leurs efficacités respectives aux faibles et aux fortes pressions.

5.1.1 Choix des raies pompe et sonde

Un laser pompe accordé sur la raie f_{2m} (3.18 GHz) excite simultanément, compte tenu de l'élargissement Doppler dans nos conditions expérimentales de pompage optique, les populations des sous-niveaux A_5 et A_6 . Comme expliqué dans le paragraphe 4.2.2 et à cause des phénomènes de surpolarisation, nous choisissons pour mesurer la polarisation à l'état stationnaire et en dynamique de pompage un doublet de détection qui n'excite pas les populations de la paire de sous-niveaux (A_5 , A_6). Dans ce cas, le doublet de détection retenu comporte les deux transitions A_2-B_9 à 52.46 GHz et A_1-B_{10} à 57.75 GHz et est excité par une lumière laser polarisée σ^+ . Un diagramme représentatif des différentes transitions atomiques excitées par les lasers pompe et sonde lors d'un pompage f_{2m} est présenté dans la Fig.5.1.

La raie f_{2p} (32.56 GHz) excite quant à elle les populations des sous-niveaux métastables A_1 et A_2 . Dans le pompage f_{2p} , le doublet sonde utilisé pour la détection et la mesure de M est le même que celui utilisé pour un pompage f_{4m} décrit ci-après.

La raie f_{4m} (-15.52 GHz) excite simultanément les populations de quatre sous-niveaux métastables A_1 à A_4 . Lors d'un pompage f_{4m} , la fréquence du laser sonde polarisé σ^- est balayée au niveau des transitions atomiques A_5-B_9 à -27.37 GHz et A_6-B_{10} à -31.04 GHz. Ainsi, et grâce aux mesures d'absorption du laser sonde, les populations des sous-niveaux A_5 et A_6 non excités par le laser pompe sont déterminées. Les différentes transitions atomiques excitées par les lasers pompe et sonde lors d'un pompage f_{4m} sont représentées dans la Fig.5.2.

Dans le cas d'un pompage f_{4p} (26.39 GHz), les sous-niveaux excités sont A_3 à A_6 . Le laser sonde polarisé σ^+ est balayé en fréquence au niveau des transitions

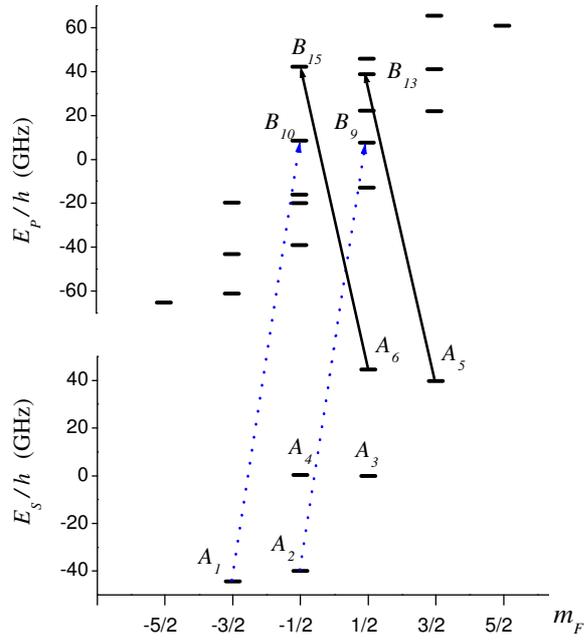


FIG. 5.1 – Les transitions atomiques de la raie f_{2m} sont représentées par des flèches pleines. Les transitions retenues pour la sonde et représentées par les flèches en pointillés sont A_2 - B_9 à 52.46 GHz et A_1 - B_{10} à 57.75 GHz.

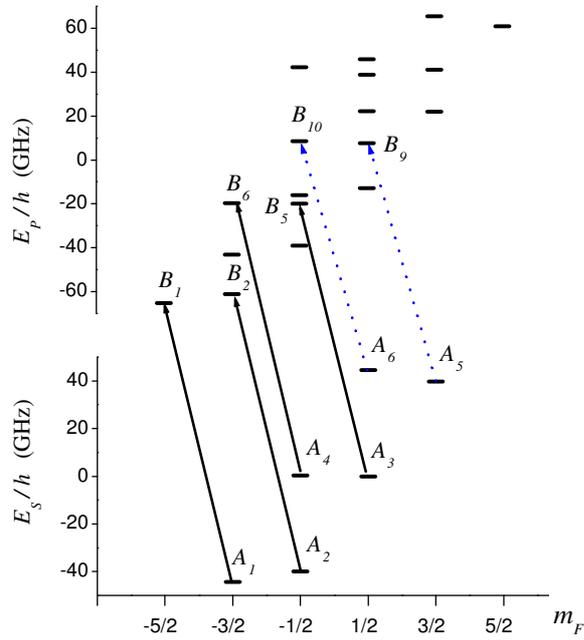


FIG. 5.2 – Les transitions atomiques de la raie f_{4m} sont représentées par des flèches pleines. Les transitions retenues pour la sonde et représentées par les flèches en pointillés sont A_5 - B_9 à -27.37 GHz et A_6 - B_{10} à -31.04 GHz.

atomiques A_1-B_{10} et A_2-B_9 , comme pour un pompage f_{2m} , afin de déterminer les populations relatives des sous-niveaux A_1 et A_2 .

Le pompage avec un laser polarisé σ^- sur la raie A_6-B_{10} (-31.04 GHz) ou sur la raie A_5-B_9 (-27.36 GHz) s'accompagne du choix du même doublet de détection que le pompage f_{2m} . Inversement, le pompage avec un laser polarisé σ^+ sur la raie A_2-B_9 (52.46 GHz), sur la raie A_1-B_{10} (57.75 GHz) ou sur la raie A_1-B_{15} (91.28 GHz) requiert le choix du même doublet de détection que le pompage f_{4m} .

5.1.2 Résultats du pompage optique

Nous avons procédé dans notre étude à une vérification expérimentale de l'efficacité de chaque raie atomique pour le pompage optique. Les raies intenses f_{4m} , f_{4p} , f_{2m} et f_{2p} s'avèrent être doublement favorables au pompage optique d'une part à cause de leurs intensités élevées (la lumière laser est donc fortement absorbée par les atomes métastables) et d'autre part à cause de leurs compositions spectrales respectives (les actions cumulées de l'excitation simultanée des transitions atomiques se traduisent par un bilan important de transfert de moment cinétique). D'autres raies, moins intenses, ont été également examinées.

Pour cette étude, des plasmas favorables au pompage optique sont entretenus dans les cellules d'hélium-3 à toutes les pressions; l'intensité de la décharge est choisie conformément aux critères présentés dans le paragraphe 5.2. Étant donné un plasma à une certaine pression, plusieurs pompes excitant les différentes raies atomiques sont effectués. Nous reportons les valeurs des polarisations stationnaires M_{stat} obtenues ainsi que les temps de construction de la polarisation t_b en fonction de la fréquence du laser pompe accordée pour exciter une raie atomique.

Régime des faibles pressions

Nous présentons dans la Fig.5.3 les résultats de pompage optique à 1.5 Tesla, obtenus dans la cellule à 1.33 mbar, en pompant successivement sur les raies A_5-B_9 , f_{4m} décalée de 1 GHz dans le sens des fréquences décroissantes (-16.52 GHz), f_{4m} , f_{2m} , f_{4p} décalée de 1 GHz dans le sens des fréquences décroissantes, f_{4p} , f_{2p} et A_1-B_{15} . Ces résultats sont obtenus dans les mêmes conditions de plasma ($T_{1dech} = 300$ s) et puissance du laser pompe ($P_{laser} = 500$ mW).

À faible pression, les polarisations les plus élevées sont obtenues en pompant sur la raie f_{4m} décalée de 1 GHz dans le sens des fréquences décroissantes. En décalant de 1 GHz la fréquence du laser, la contribution de la transition antagoniste A_3-B_5 de la raie f_{4m} est réduite (paragraphe 2.1.3). Les résultats obtenus en variant le désaccord du laser pompe par rapport aux raies comportant plusieurs transitions sont confrontés aux prédictions du modèle numérique dans le chapitre

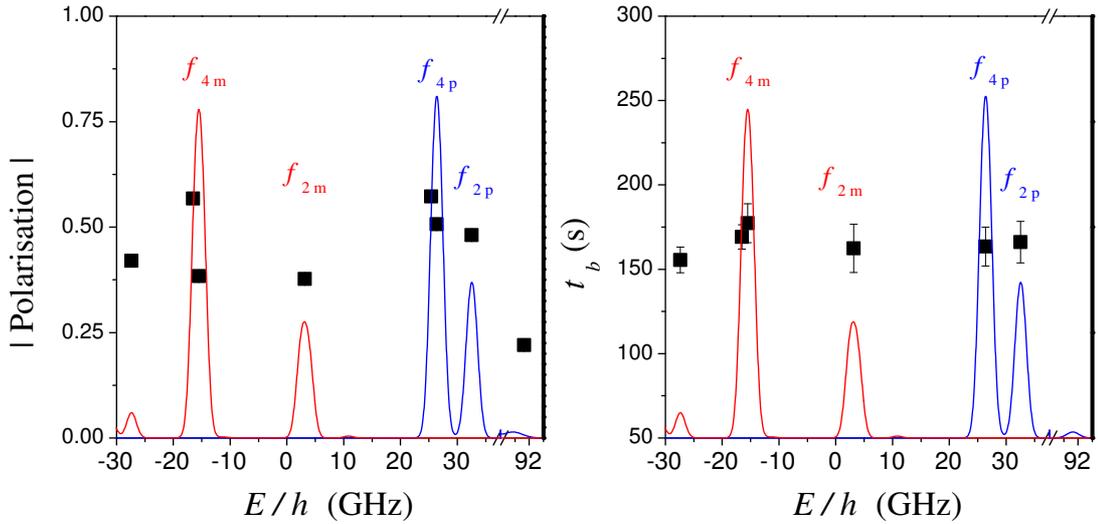


FIG. 5.3 – Résultats de pompage optique en fonction de la fréquence du laser pompe accordé sur une raie atomique de l'hélium-3 à 1.5 Tesla et à 1.33 mbar (carrés). La puissance laser incidente au niveau de la cellule de pompage optique est 500 mW (paragraphe 3.4.2). Nous représentons à titre indicatif une partie du spectre d'absorption de l'hélium-3.

6. Selon l'intensité de la décharge et les paramètres du laser pompe, des polarisations similaires à celles obtenues par pompage optique standard (jusqu'à 0.6-0.8) peuvent être obtenues à 1.33 mbar en utilisant la raie f_{4m} [Abb04]. Des résultats comparables sont obtenus en pompant sur la raie f_{4p} décalée de 1 GHz (25.39 GHz au lieu de 26.39 GHz) afin de réduire la contribution de la transition antagoniste A_4-B_{12} . Les pompages mono-transition à -27.36 GHz et à 91.28 GHz reposant sur l'excitation d'un seul sous-niveau de $m_F = -3/2$ et $m_F = 3/2$ respectivement mènent à des polarisations non négligeables en dépit des faibles intensités des raies atomiques.

Régime des fortes pressions

Nous présentons dans la Fig.5.4 les résultats de pompage optique à 1.5 Tesla, en pompant successivement sur les raies A_5-B_9 , le flanc gauche de f_{4m} , f_{4m} , f_{2m} , le flanc gauche de f_{4p} , f_{4p} et f_{2p} dans les cellules de pressions élevées : 32 mbar ($T_{1\ dech} = 1490$ s), 40.4 mbar ($T_{1\ dech} = 1300$ s) et 67 mbar ($T_{1\ dech} = 1300$ s).

La raie la plus performante en termes de polarisation nucléaire maximale est la raie f_{2m} . La raie f_{2p} permet aussi d'avoir des polarisations nucléaires comparables. Pomper sur les raies f_{4m} ou f_{4p} ou sur leurs flancs est également intéressant à toutes les pressions : les temps de construction de la polarisation sont plus courts

que ceux obtenus lors des pompages sur d'autres raies. Ce qui fournit des taux de production de la polarisation plus importants. Le pompage mono-transition à -27.36 GHz donne également des polarisations non négligeables ; toutefois, vu la faible intensité de la raie, ce pompage reste moins efficace que les autres.

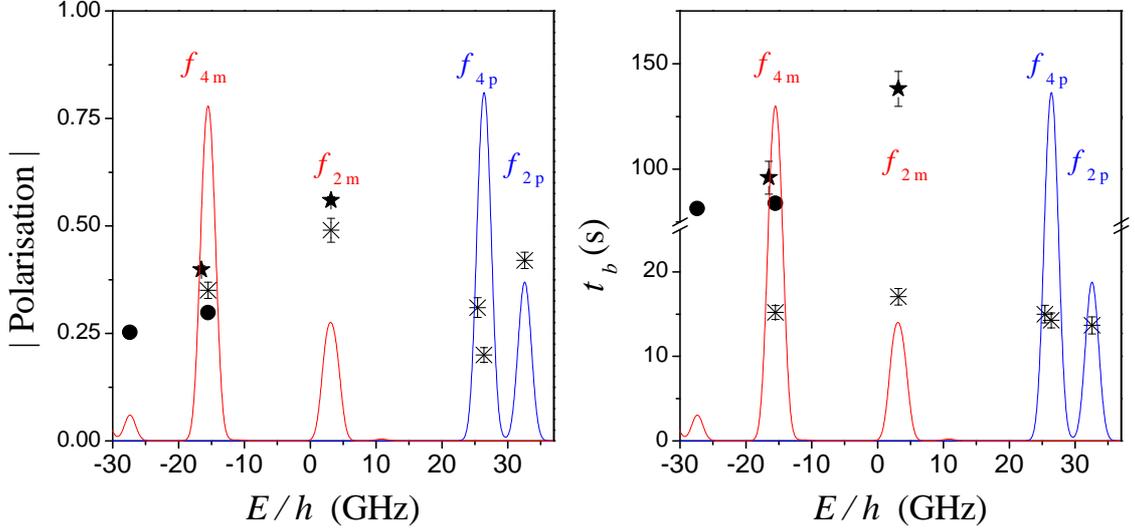


FIG. 5.4 – Résultats de pompage optique en fonction de la fréquence du laser pompe accordé sur une raie atomique de l'hélium-3 à 1.5 Tesla. Ces résultats sont obtenus dans les cellules cylindriques à 32 mbar (étoiles) et 67 mbar (cercles) avec une puissance laser incidente de 500 mW ; les résultats à 40.4 mbar (astérisques) sont obtenus dans la cellule à os avec une puissance laser de 25 mW (le faisceau laser utilisé dans le cas des cellules cylindriques est diaphragmé circulairement pour obtenir un faisceau de diamètre 0.5 cm). Nous représentons à titre indicatif une partie du spectre d'absorption de l'hélium-3.

5.2 Effets de la décharge à 1.5 Tesla

5.2.1 Caractérisation de la décharge

Pour porter les atomes d'hélium-3 dans le niveau métastable 2^3S_1 , une décharge radiofréquence est entretenue dans la cellule de pompage optique grâce à l'application d'un champ électrique radiofréquence (paragraphe 3.2.2). Dans notre étude, nous n'avons pas procédé à une cartographie spatiale de la distribution des atomes métastables. Nous nous sommes restreints à caractériser les décharges en fonction de leurs apparences visuelles et de leurs intensités. Quantitativement, ceci revient à les caractériser par deux paramètres globaux : la densité d'atomes métastables intégrée le long du faisceau pompe ou sonde n_m

et le temps de relaxation longitudinale de la polarisation en présence de plasma $T_{1\ dech}$ (paragraphe 2.2.3). En effet, l'intensité de la décharge radiofréquence est un paramètre expérimental pouvant affecter fortement les performances du pompage optique. Augmenter l'intensité de la décharge, en augmentant la puissance radiofréquence déposée au niveau des électrodes excitatrices, a pour conséquence directe d'augmenter le nombre de collisions ionisantes dans le plasma. Ce qui se traduit d'une part, par une augmentation de n_m (qui reste limitée à 10^{17} at/m³ à cause des collisions Penning autoionisantes) mais d'autre part, par un raccourcissement du temps de relaxation de la polarisation $T_{1\ dech}$.

Le choix de l'intensité de la décharge radiofréquence à 1.5 Tesla pose des problèmes similaires à ceux rencontrés lors du pompage optique en faible champ magnétique. Un compromis entre n_m et $T_{1\ dech}$, les deux grandeurs utilisées pour caractériser le plasma entretenu dans la cellule, est alors requis pour optimiser les performances du pompage. Il faudra augmenter l'une ou l'autre en fonction des objectifs visés : maximiser la valeur du taux de production de l'aimantation par unité de temps (inversement proportionnel à t_b) ou maximiser M_{stat} , comme illustré par les résultats présentés dans le paragraphe 5.2.3.

De plus, des problèmes spécifiques apparaissent dans nos expériences en champ magnétique intense. L'application d'un champ magnétique intense affecte les trajectoires des électrons ; ceci se traduit par une modification de l'apparence visuelle du plasma entretenu dans les cellules à faible pression et affecte les paramètres globaux de caractérisation de la décharge.

Par ailleurs, et comme nous allons le voir (paragraphe 5.4), le pompage en champ magnétique intense étend le domaine d'applicabilité du pompage optique par échange de métastabilité aux pressions élevées. Ce qui nous amène à considérer expérimentalement la façon de générer et entretenir les plasmas dans les cellules à pressions supérieures à 1 mbar.

5.2.2 Géométrie des électrodes excitatrices

Les électrodes excitatrices peuvent être montées de diverses façons sur les parois de la cellule de pompage optique. Leur géométrie et leur disposition affectent fortement la répartition des atomes métastables au sein de la cellule. Même si dans notre étude nous n'avons pas procédé à une cartographie spatiale de la distribution des atomes métastables pour chaque configuration d'électrodes, nous présentons des résultats de pompage optique pour différentes configurations.

Orientation du champ électrique radiofréquence

Nous avons considéré dans notre étude deux orientations du champ électrique \mathbf{E} de la décharge par rapport au champ magnétique \mathbf{B} de l'imageur clinique : $\mathbf{E} \parallel \mathbf{B}$ et

$\mathbf{E} \perp \mathbf{B}$. Empiriquement, nous avons observé qu'il est beaucoup plus facile d'allumer et d'entretenir une décharge dont le champ électrique \mathbf{E} est orienté parallèlement au champ magnétique statique \mathbf{B} requis pour le pompage optique. D'ailleurs pour orienter le champ électrique perpendiculairement au champ magnétique dans nos expériences, nous commençons par allumer la décharge de façon à avoir $\mathbf{E} \parallel \mathbf{B}$, puis sans éteindre la décharge nous tournons la cellule de façon à avoir $\mathbf{E} \perp \mathbf{B}$. Malgré toutes ces précautions, il est extrêmement difficile d'accorder le circuit à résonance, d'entretenir la décharge et d'obtenir des densités d'atomes métastables comparables à celles obtenues dans le cas d'une configuration $\mathbf{E} \parallel \mathbf{B}$. À 32 mbar, et après plusieurs tentatives pour allumer la décharge, nous avons obtenu de faibles densités de métastables (de l'ordre de $(0.9 \pm 0.1) \times 10^{16}$ at/m³) avec des $T_{1 \text{ dech}}$ courts (près de 220 ± 28 s). Dans cette configuration, le pompage optique n'est pas aussi efficace que dans une configuration $\mathbf{E} \parallel \mathbf{B}$ (voir Fig.5.6); des polarisations nucléaires M_{stat} de l'ordre de 0.20 ± 0.02 sont obtenues. Dans la suite, nous n'examinons que les performances expérimentales correspondant au cas $\mathbf{E} \parallel \mathbf{B}$, favorable au pompage optique.

Disposition des électrodes excitatrices

À 1.33 mbar et à l'instar des expériences réalisées en faible champ magnétique, une seule paire d'électrodes enroulées autour de la cellule est utilisée. Cette configuration permet d'avoir des $T_{1 \text{ dech}}$ allant de quelques dizaines de secondes à près de 2000 s avec des densités de métastables allant de 2.5×10^{16} at/m³ à 0.4×10^{16} at/m³. Les caractéristiques de ces décharges sont reproduites dans la Fig.5.5 et des exemples de résultats du pompage optique obtenus dans cette configuration sont présentés dans la Fig.5.7.

L'utilisation de deux électrodes enroulées autour de la cellule n'est pas propice aux pressions plus élevées. Dans cette configuration, la décharge est plus brillante à proximité des électrodes (là où le champ électrique \mathbf{E} est le plus intense). La distribution des atomes métastables est fortement non-uniforme : en déplaçant un faisceau sonde transversalement à l'axe de la cellule, nous observons qu'au niveau des électrodes, les densités d'atomes métastables sont élevées (les absorptions du faisceau sonde élevées) alors que tout au long de l'axe de la cellule cylindrique, une très petite fraction d'atomes métastables interagit avec le laser pompe. Nous avons essayé empiriquement plusieurs configurations d'électrodes dans le but d'augmenter la densité d'atomes métastables le long de l'axe de la cellule sans raccourcir les $T_{1 \text{ dech}}$ et par la suite améliorer les performances du pompage optique à forte pression : une paire d'électrodes circulaires de diamètre 5 cm enroulées autour de la cellule, une paire de petites électrodes circulaires de diamètre 2.5 cm posées au contact des fenêtres optiques de la cellule, deux paires d'électrodes circulaires (deux petites et deux grandes) connectées deux à deux de telle façon que deux électrodes successives aient des potentiels de polarités identiques ou

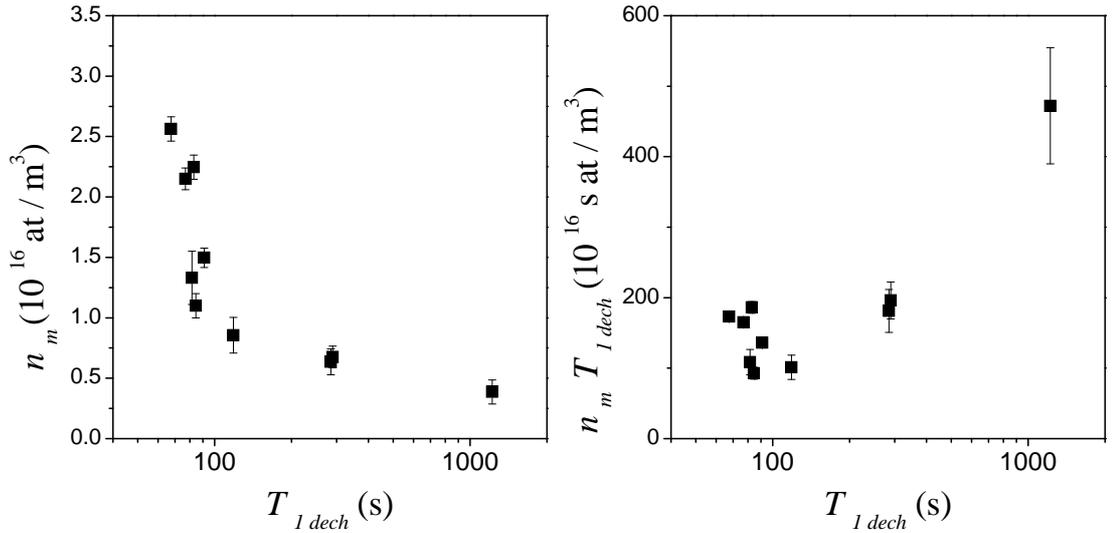


FIG. 5.5 – Caractéristiques des décharges radiofréquences à 1.33 mbar et 1.5 Tesla. n_m est la densité moyenne d’atomes métastables géométriquement présents dans le faisceau pompe. $T_{1\ dech}$ est le temps de relaxation longitudinale de la polarisation en présence de plasma. Une paire d’électrodes circulaires enroulées autour de la cellule est utilisée pour entretenir la décharge.

opposées ont été essayées. Un exemple de comparaison des performances obtenues à 32 mbar est présenté dans la table 5.1. Nous y présentons en fonction de la disposition des électrodes les paramètres caractéristiques de la décharge et les résultats du pompage optique. Les décharges les plus favorables au pompage optique et les moins relaxantes sont celles obtenues en montant sur la cellule cylindrique deux paires d’électrodes de façon à avoir deux électrodes successives de potentiels opposés (photo illustrée dans la Fig.3.4).

Nous présentons dans la Fig.5.6 une étude de caractérisation de la décharge pour cette configuration d’électrodes. En variant l’intensité de la puissance radiofréquence déposée au niveau des électrodes (d’une fraction de Watts à quelques Watts), les densités de métastables couvrent un large intervalle allant de 1×10^{16} at/ m^3 à 8×10^{16} at/ m^3 ; les $T_{1\ dech}$ peuvent être très longs par comparaison aux plasmas entretenus dans les conditions standard, jusqu’à près de 2000 s. Bien évidemment, ces résultats ne sont pas universels; ils peuvent dépendre en plus de l’orientation et de la géométrie des électrodes d’autres paramètres tels que l’écartement entre les électrodes *etc.* Cependant, ils donnent une idée à la fois qualitative et quantitative des plasmas que nous pouvons générer aux hautes pressions et dans un champ magnétique de 1.5 Tesla. Les résultats de pompage optique dans ces plasmas sont reproduits dans les Figs.5.8 et 5.9.

TAB. 5.1 – Exemple d’influence de la configuration géométrique des électrodes sur les performances du pompage optique à 32 mbar. Le laser pompe, de puissance incidente 250 mW, est accordé sur la raie f_{4m} décalée de 1 GHz dans le sens des fréquences décroissantes. Les trois lignes correspondent respectivement aux configurations suivantes : une paire de petites électrodes posées au contact des fenêtres optiques de la cellule ; deux paires d’électrodes montées de façon que deux électrodes successives aient des potentiels opposés ou identiques.

	$T_{1\ dech}$ (s)	n_m (10^{16} at/m ³)	M_{stat}	t_b (s)	dM/dt (à M=0) (s ⁻¹)
petites	416 ± 28	3.73 ± 0.08	0.28 ± 0.01	65 ± 4	0.0043 ± 0.0004
opposés	640 ± 30	3.34 ± 0.08	0.28 ± 0.01	57 ± 6	0.0049 ± 0.0007
identiques	617 ± 23	3.21 ± 0.14	0.29 ± 0.01	71 ± 7	0.0041 ± 0.0005

5.2.3 Résultats du pompage optique

À 1.33 mbar, des résultats typiques de pompage sur la raie f_{4m} dans un plasma entretenu par “une paire d’électrodes enroulées autour de la cellule” sont reportés dans la Fig.5.7. Pour les décharges faibles et modérées ($T_{1\ dech}$ allant de 300 s à 1500 s), les temps de construction de la polarisation t_b (variant entre 60 s et 350 s) sont presque proportionnels à $T_{1\ dech}$, proportionnalité illustrée par la courbe en traits pointillés dans la Fig.5.7. Les polarisations stationnaires ($\simeq 0.8$) obtenues avec une puissance de 2 W, délivrée par un laser à fibre multimode commercialisé par Keopsys [Tas04], sont indépendantes de $T_{1\ dech}$. Pour les fortes décharges, les temps de construction t_b de la polarisation sont plus courts (variant entre 15 s et 55 s) et M_{stat} varie entre 0.4 et 0.65. L’augmentation de la densité d’atomes métastables suite à l’augmentation de la puissance radiofréquence déposée au niveau des électrodes se traduit par une augmentation de l’absorption du laser pompe par les atomes métastables et donc par un raccourcissement du temps de construction de la polarisation t_b . Toutefois, dans ces mêmes conditions, la valeur de la polarisation nucléaire stationnaire M_{stat} est fortement limitée.

Les résultats de pompage obtenus aux pressions élevées, en utilisant la configuration “deux paires d’électrodes montées sur la cellule de façon que deux électrodes successives sont de potentiels opposés”, sont reportés dans les Figs.5.8 et 5.9. Nous y présentons des résultats expérimentaux obtenus en pompant respectivement sur la raie f_{2m} et la raie f_{4m} décalée de 1 GHz dans le sens des fréquences décroissantes. Les décharges permettant d’obtenir les plus fortes valeurs de M_{stat} sont les décharges “faibles”, proches du seuil d’extinction ; leur

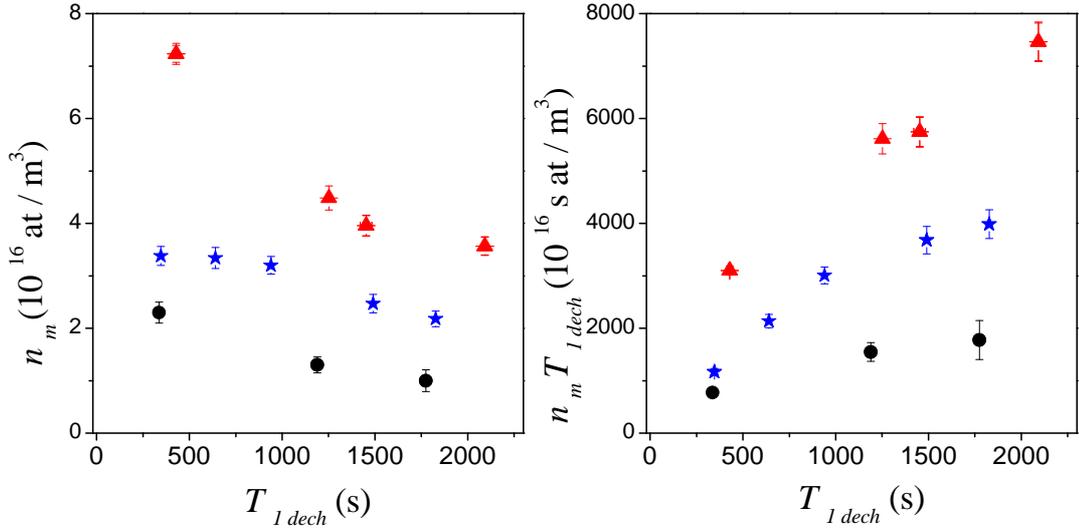


FIG. 5.6 – Caractéristiques des décharges radiofréquences utilisées pour les pressions élevées. Deux paires d'électrodes circulaires (deux enroulées autour de la cellule et deux posées au niveau des fenêtres optiques) avec des potentiels électriques opposés sont utilisées pour entretenir la décharge. Les triangles correspondent à la cellule de 8 mbar, les étoiles à 32 mbar et les cercles à 67 mbar.

niveau est réglé en baissant progressivement la puissance radiofréquence déposée dans la cellule (de quelques Watts à 0.1 ou 0.25 W) et en accordant la fréquence de la décharge à résonance avec le circuit élévateur de tension (2-3 MHz). En baissant ainsi l'intensité de la décharge, $T_{1\ dech}$ varie de 500 s à 2000 s et M_{stat} varie entre -0.60 et -0.71 à 8 mbar, entre -0.37 et -0.49 à 32 mbar, et entre -0.28 et -0.36 à 67 mbar en pompant sur la raie f_{2m} avec une puissance laser incidente de 250 mW. Bien évidemment, cette augmentation de M_{stat} en diminuant l'intensité de la décharge s'accompagne d'un rallongement du temps de construction de la polarisation t_b , et ce à toutes les pressions.

Les effets de l'intensité de la décharge radiofréquence sur les résultats du pompage optique à 1.5 Tesla se manifestent par des comportements en accord avec les prédictions qualitatives du modèle à 6 populations décrit dans le paragraphe 2.3 : *i-* aux faibles pressions, et par comparaison avec les performances du pompage optique en faible champ magnétique [Sto96a], [Gen93], [Led00], nous observons un ralentissement de la dynamique de construction de M de près d'un ordre de grandeur.

ii- en augmentant la densité d'atomes métastables n_m , nous observons un raccourcissement du temps de construction de la polarisation (Eq.2.59).

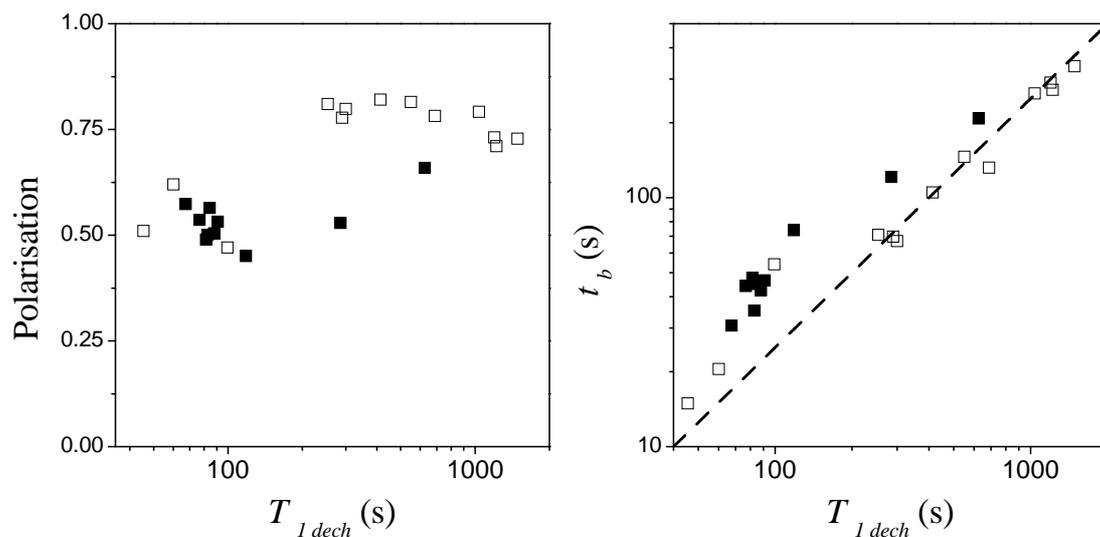


FIG. 5.7 – Performances du pompage optique en fonction de l'intensité de la décharge caractérisée par le temps de relaxation longitudinale de la polarisation $T_{1\ dech}$ à 1.33 mbar. Une seule paire d'électrodes enroulées autour de la cellule est utilisée pour entretenir la décharge. La raie de pompage est la raie $f_{4\ m}$. Les carrés pleins correspondent aux résultats obtenus en utilisant un laser pompe de puissance incidente 500 mW (paragraphe 3.4.2); les carrés creux correspondent aux résultats obtenus avec une puissance laser incidente de 2 W [Tas04]. La courbe en traits pointillés est un guide pour l'œil correspondant à une droite de pente 0.25.

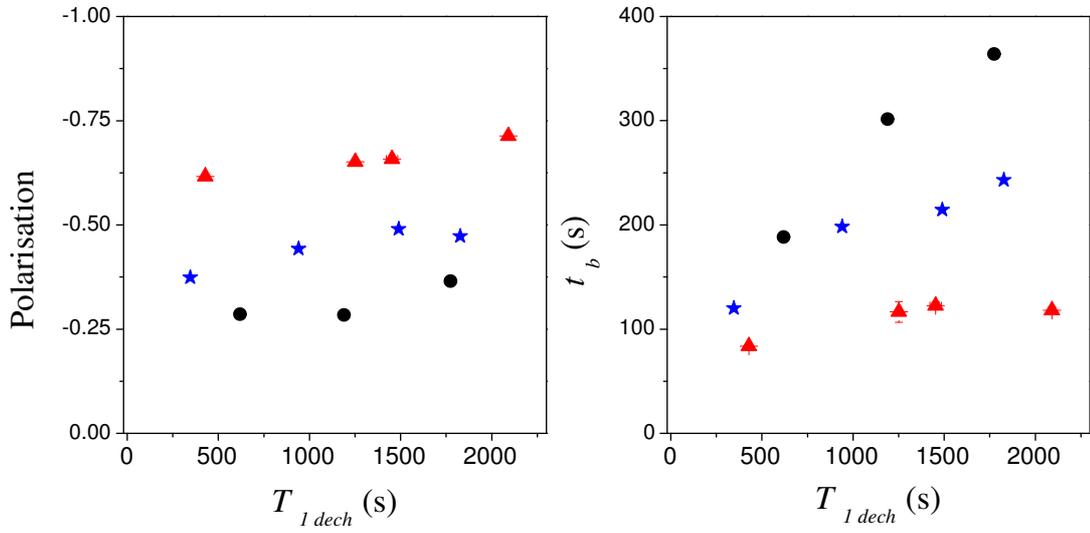


FIG. 5.8 – Performances du pompage optique sur la raie f_{2m} en fonction de l'intensité de la décharge caractérisée par le temps de relaxation longitudinale de la polarisation $T_{1\ dech}$. Les densités de métastables n_m respectives sont reportées dans la Fig.5.6. La puissance incidente du laser pompe est 250 mW ; le faisceau a un diamètre de 1.6 cm. Les triangles correspondent à la cellule de 8 mbar, les étoiles à 32 mbar et les cercles à 67 mbar.

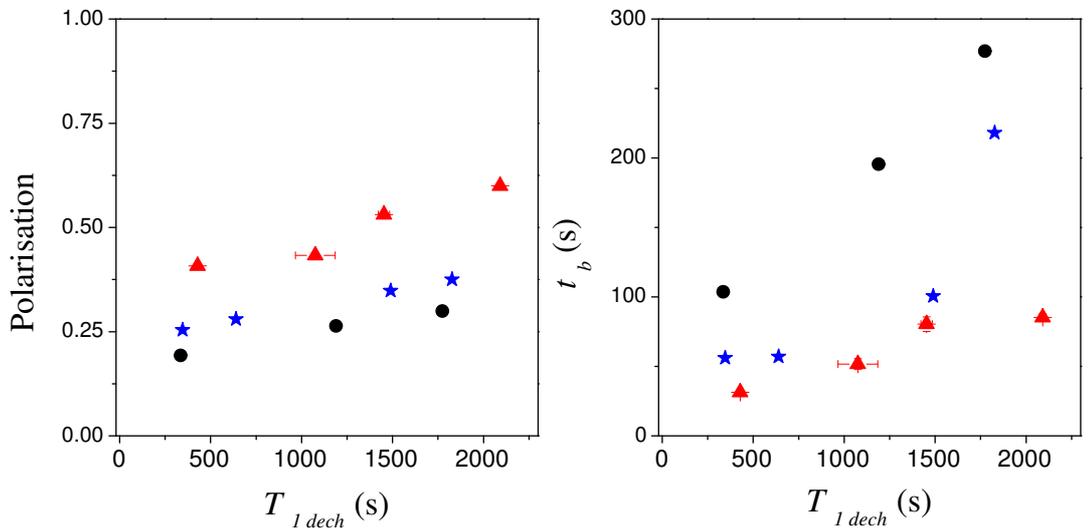


FIG. 5.9 – Mêmes conditions expérimentales que celles de la Fig.5.8. La raie de pompage est la raie f_{4m} décalée de 1 GHz dans le sens des fréquences décroissantes.

5.2.4 Géométrie de la cellule de pompage optique

En utilisant une paire d'électrodes pour entretenir la décharge dans les cellules cylindriques aux pressions élevées, les atomes métastables sont localisés près des électrodes et des parois de la cellule (paragraphe 5.2.2). Nous pouvons imaginer qu'en réduisant le volume intérieur de la cellule cylindrique en diminuant le diamètre du cylindre, nous pouvons améliorer la répartition spatiale des atomes métastables et augmenter la fraction d'atomes pouvant interagir avec le laser pompe le long de l'axe de la cellule.

Au moment de nos expériences, nous disposions d'une seule cellule à "os" (photo dans la Fig.3.3) dont la géométrie est décrite dans le paragraphe 3.2.1. Cette cellule est plus complexe que les cellules cylindriques. Seule une petite fraction (près de 1/15) du volume total de la cellule intervient dans le processus de pompage (décharge radiofréquence et interaction avec le laser pompe). Il s'agit de la fraction constituée par le tube cylindrique de la cellule (l'os). La partie sphérique constitue un réservoir important d'atomes d'hélium-3 (près de 14/15 du volume total) interagissant par la diffusion avec les atomes présents dans l'os. Expérimentalement, nous avons observé qu'il est beaucoup plus facile d'allumer et d'entretenir la décharge dans le tube de la cellule à os par comparaison avec les cellules cylindriques 5 cm×5 cm. De plus, à 1.5 Tesla, comme en champ magnétique moins fort (0.1 Tesla [Cou01]), des plasmas très intenses peuvent être entretenus dans cette cellule à 40.4 mbar d'hélium-3. Des résultats typiques de décharge radiofréquence entretenue dans cette cellule sont présentés dans la table 5.2. Nous y illustrons en fonction du $T_{1\ dech}$ mesuré dans la cellule, les densités d'atomes métastables générées dans le tube cylindrique de la cellule à os ainsi que le temps de relaxation longitudinale de la polarisation $T_{1\ dech}^{tube}$ dans la partie cylindrique. Compte tenu des volumes respectifs du tube cylindrique V_{tube} et de la cellule $V_{cellule}$ et en négligeant tous les processus de relaxation vers les parois de la partie sphérique, $T_{1\ dech}^{tube}$ s'écrit :

$$T_{1\ dech}^{tube} = \frac{V_{tube}}{V_{cellule}} T_{1\ dech} = \frac{T_{1\ dech}}{15} \quad (5.1)$$

Les absorptions élevées du faisceau laser par les atomes métastables le long de l'axe de la cellule se traduisent par des densités d'atomes métastables systématiquement supérieures à celles obtenues dans la cellule cylindrique (5 cm×5 cm) de pression comparable (32 mbar). Toutefois, ce gain en densité de métastables s'accompagne d'un raccourcissement du temps effectif de relaxation longitudinale de la polarisation $T_{1\ dech}^{tube}$.

Plusieurs expériences de pompage optique ont été effectuées dans cette cellule. Dans un premier temps, la taille du faisceau pompe divergent (paragraphe 3.4.2) est réduite à l'aide d'un diaphragme circulaire de diamètre 0.5 cm au niveau de la fenêtre optique de la cellule. Seule une faible puissance (pouvant aller jusqu'à

TAB. 5.2 – Caractéristiques typiques des décharges radiofréquences entretenues à 1.5 Tesla dans la cellule à os à 40.4 mbar. Quatre électrodes sont utilisées; elles sont enroulées sur l'os et connectées deux à deux de façon à ce que deux électrodes successives soient de potentiel opposé.

T_1 <i>dech</i> (s)	2093 ± 33	1324 ± 41	849 ± 17	767 ± 18
T_1 <i>dech</i> ^{tube} (s)	140 ± 2	88 ± 3	57 ± 1.2	51 ± 1.2
n_m (10^{16} at/m ³)	4.1 ± 0.2	4.4 ± 0.3	4.9 ± 0.6	5.9 ± 0.2

25 mW) est incidente sur la cellule et disponible au pompage optique. Dans un second temps, le faisceau pompe est focalisé pour atteindre des puissances surfaciques importantes (jusqu'à 1.3 W/cm^2) puis diaphragmé à 0.5 cm : ce qui correspond à un faisceau laser de puissance 250 mW et de diamètre 0.5 cm. Les résultats de polarisation et de temps de construction t_b ^{tube} sont présentés dans la Fig.5.10. Les mesures à faibles et fortes intensités laser sont effectuées dans deux décharges différentes : les T_1 *dech* et les n_m respectifs sont de 1324 s et 4.4×10^{16} at/m³ et de 767 s et 5.9×10^{16} at/m³. En pompant sur la raie f_{2m} , nous obtenons à 40.4 mbar des polarisations nucléaires de l'ordre de -0.4 avec seulement une puissance laser de 25 mW. La polarisation nucléaire ne varie pas significativement pour une intensité lumineuse moyenne allant de 0.13 à 1.3 W/cm^2 . Un raisonnement analogue à celui permettant d'estimer les T_1 ^{tube} *dech* à partir des mesures de T_1 *dech* est utilisé pour estimer les t_b ^{tube}, temps de construction de la polarisation dans la partie cylindrique de la cellule à partir des mesures de t_b dans toute la cellule. Au fur et à mesure que la puissance laser augmente, les temps de construction de la polarisation se raccourcissent progressivement.

Un gain au niveau du raccourcissement du temps de construction de la polarisation est obtenu dans la cellule à os par comparaison avec les résultats obtenus dans les cellules cylindriques de pression comparable (les étoiles dans la Fig.5.8). Ce gain est probablement dû à l'augmentation de la densité d'atomes métastables et à la réduction du volume de pompage. Une étude systématique du pompage à forte pression dans un ensemble de cellules cylindriques de diamètre ϕ tel que $1 \text{ cm} < \phi < 5 \text{ cm}$ devrait sans doute pouvoir aider à éclaircir ce point et contribuer certainement à l'amélioration des plasmas entretenus aux pressions élevées.

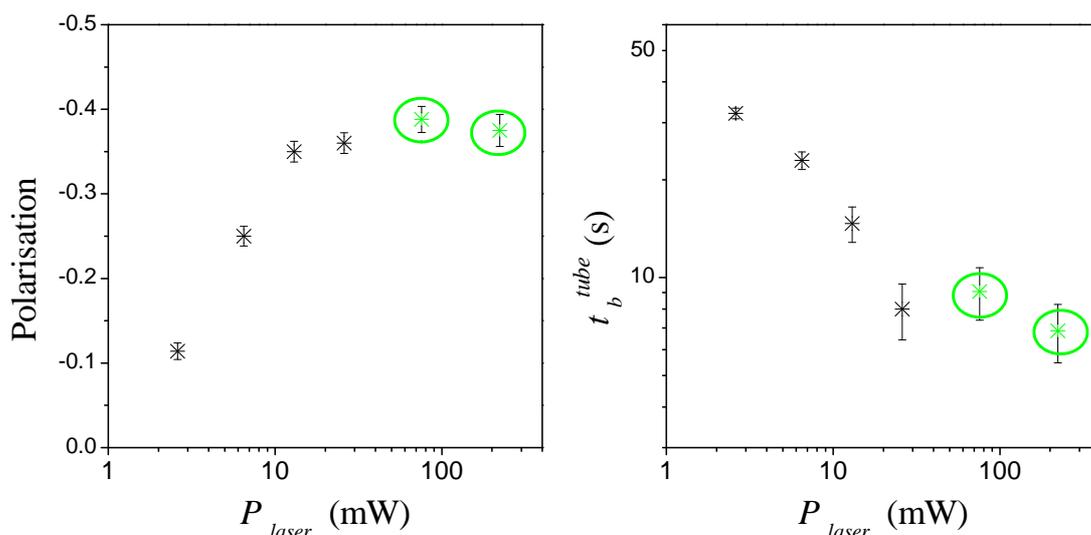


FIG. 5.10 – Résultats de pompage optique (polarisation stationnaire et temps de construction dans le tube de la cellule à os) à 40.4 mbar en variant la puissance laser incidente à la cellule. La raie de pompage est la raie f_{2m} . Les résultats symbolisés par des astérisques correspondent à l'utilisation d'un faisceau pompe dont la taille est réduite à l'aide d'un diaphragme circulaire de diamètre 0.5 cm. Les autres (astérisques dans un cercle) correspondent à un faisceau pompe focalisé pour atteindre des puissances surfaciques plus élevées puis diaphragmé (voir texte).

5.3 Effets de la puissance du laser pompe

Nous considérons dans ce paragraphe l'effet de la puissance laser incidente sur les résultats du pompage optique aux pressions élevées. Nous nous mettons dans des conditions de décharge douce pour toutes les pressions (*i.e.* $T_1^{dech} \geq 1000$ s). Puis nous procédons à divers pompages en variant la puissance laser incidente sur la cellule de pompage. La fréquence du laser pompe est accordée pour exciter la raie f_{2m} ou le flanc gauche de la raie f_{4m} (*i.e.* la raie f_{4m} désaccordée de 1 GHz environ dans le sens des fréquences décroissantes).

Les résultats (polarisation stationnaire et temps de construction de la polarisation) obtenus à 8 mbar, 32 mbar et 67 mbar sont reproduits dans les Figs.5.11 et 5.12. Pour les deux raies de pompage, nous observons que la polarisation stationnaire augmente progressivement avec la puissance disponible avant d'atteindre un plateau clairement observé à 8 mbar. Également, les temps de construction de la polarisation se raccourcissent progressivement.

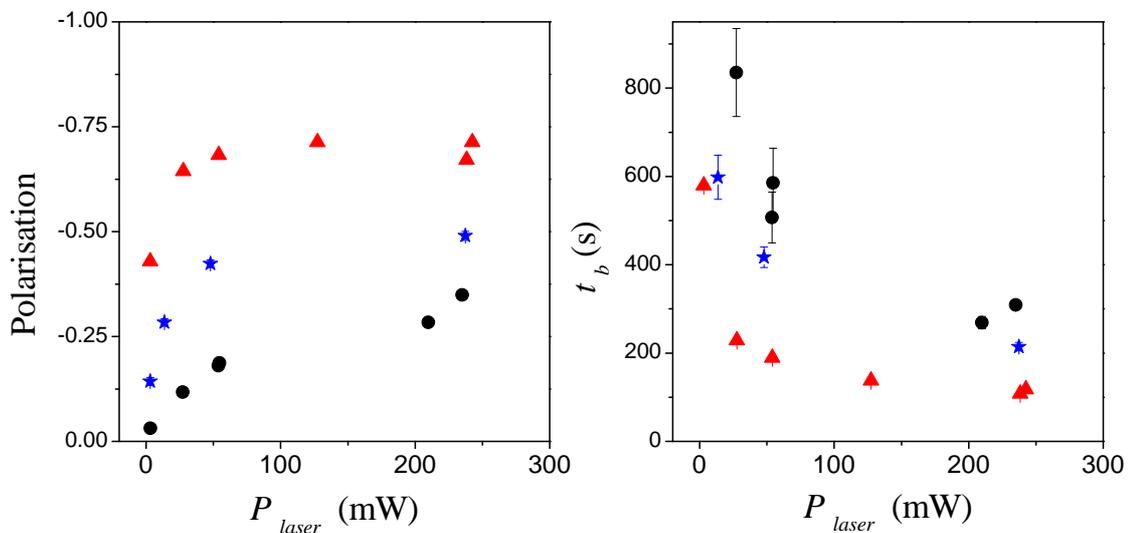


FIG. 5.11 – Résultats du pompage optique sur la raie f_{2m} en fonction de la puissance laser incidente au niveau de la cellule. Les triangles correspondent à la cellule de 8 mbar, les étoiles à 32 mbar et les cercles à 67 mbar. À 8 mbar, $T_{1\ dech} = 2092$ s et $n_m = 3.49 \times 10^{16}$ at/m³. À 32 mbar, $T_{1\ dech} = 1490$ s et $n_m = 2.47 \times 10^{16}$ at/m³. À 67 mbar, $T_{1\ dech} = 1090$ s et $n_m = 1.31 \times 10^{16}$ at/m³.

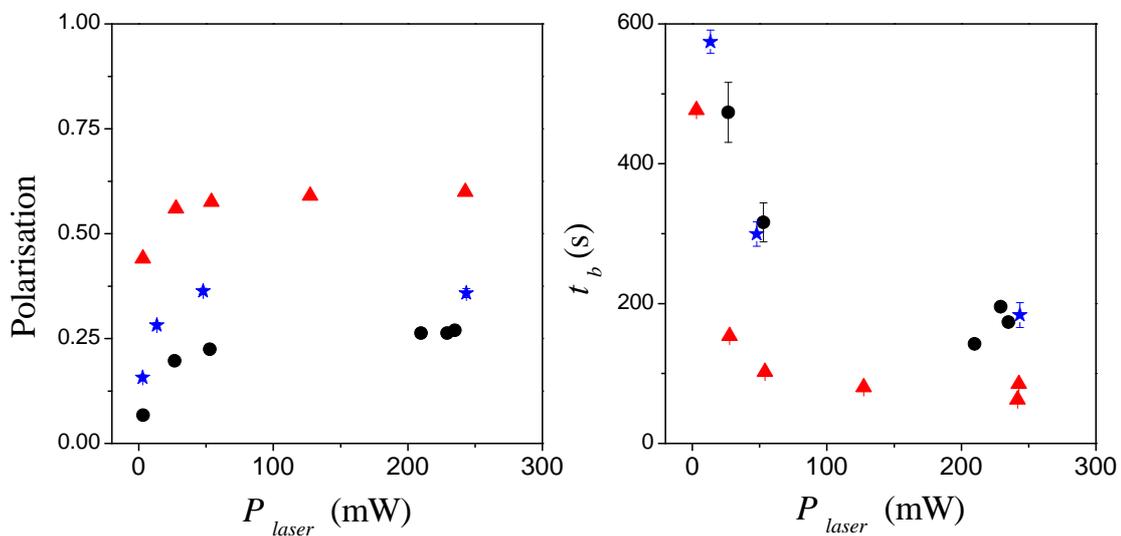


FIG. 5.12 – Mêmes conditions expérimentales que celles de la Fig.5.11 ; le pompage est effectué en excitant le flanc gauche de la raie f_{4m} .

5.4 Résultats aux pressions élevées

5.4.1 Résultats marquants de polarisation

Nous résumons dans la Fig.5.13 les résultats marquants du pompage optique par échange de métastabilité à 1.5 Tesla. Nous y présentons les polarisations sta-

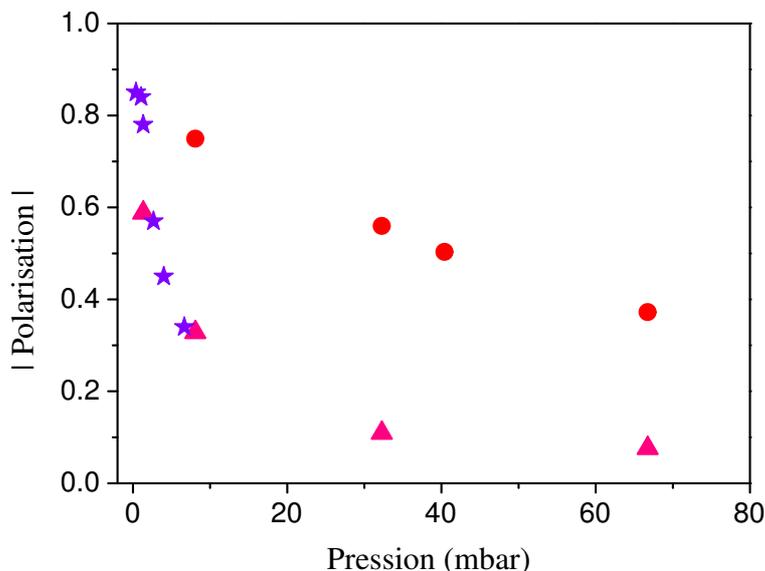


FIG. 5.13 – Meilleures polarisations stationnaires obtenues par pompage optique à 1083 nm en champ magnétique de l'ordre du mTesla (étoiles [Gen93] et triangles (paragraphe 7.1)) et à 1.5 Tesla (cercles) en fonction de la pression d'hélium-3. Les étoiles et triangles correspondent aux résultats de pompage sur la raie C₉. Les cercles correspondent aux résultats de pompage sur la raie f_{2m} .

tionnaires en fonction de la pression d'hélium-3. Pour ces expériences, le faisceau du laser pompe n'est pas diaphragmé ; toute la puissance laser délivrée par la diode laser amplifiée (500 mW) est utilisée et le faisceau laser éclaire une grande partie de la cellule. Les résultats sont obtenus en pompant sur la raie f_{2m} la plus efficace aux fortes pressions. Les polarisations maximales que nous obtenons correspondent à des records absolus de polarisations nucléaires réalisées par pompage optique par échange de métastabilité à ces pressions : -0.75 à 8 mbar, -0.56 à 32 mbar, -0.51 à 40.4 mbar et -0.37 à 67 mbar. La décroissance de M_{stat} avec la pression est bien moins forte à 1.5 Tesla qu'en faible champ magnétique.

Nous pouvons nous demander si cette décroissance en fonction de la pression présente une valeur asymptotique pour M_{stat} aux pressions élevées. Des expériences de pompage sur la raie f_{4m} à 133 mbar donnent des polarisations de l'ordre de 0.11 ; ce qui montre que la polarisation M_{stat} continue à décroître en augmentant la pression (Fig.5.14). En dépit des difficultés rencontrées pour allumer et entre-

tenir un plasma stable dans la cellule cylindrique de 133 mbar, les polarisations obtenues s'inscrivent dans la continuité de la variation expérimentale de M_{stat} . À ces pressions élevées, le recours à des cellules de plus petit diamètre améliorerait sans doute la qualité du plasma et la répartition spatiale de la densité d'atomes métastables. Nous présentons une explication de la diminution de M_{stat} avec la pression dans le chapitre 6 : mis à part les limitations intrinsèques du schéma de pompage optique à 1.5 Tesla et aux fortes pressions présentées dans le paragraphe 2.4.2 et la Fig.2.12, des processus de relaxation supplémentaire de la polarisation dans l'état fondamental et intervenant dans le domaine des puissances laser exploré expérimentalement expliqueraient en partie la diminution de M_{stat} avec la pression.

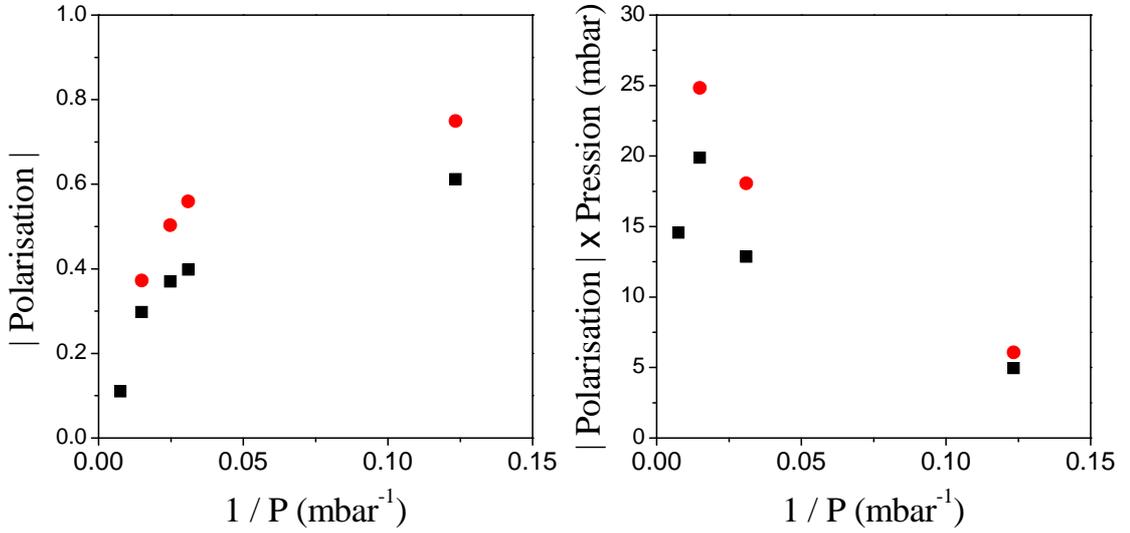


FIG. 5.14 – À gauche, meilleures polarisations obtenues par pompage optique à 1.5 Tesla en fonction de $1/P$, l'inverse de la pression d'hélium-3. - À droite, variation de la quantité Polarisation \times Pression, proportionnelle à l'aimantation dans la cellule en fonction de $1/P$. Les cercles et les carrés correspondent respectivement aux résultats de pompage sur la raie f_{2m} et la raie f_{4m} .

Pour les applications utilisant l'hélium-3 polarisé nucléairement, le rythme de production du gaz polarisé ainsi que la quantité d'aimantation obtenue par unité de temps peuvent être des paramètres plus pertinents que la valeur de la polarisation stationnaire atteinte à l'équilibre entre le laser et les atomes. À cet égard, nous introduisons comme dans [Sto96a] un taux de production de l'aimantation R_a défini par :

$$R_a = P \frac{M_{stat}}{t_b} \quad (5.2)$$

où P est la pression du gaz contenu dans la cellule. Nous résumons dans la table 5.3 les meilleures performances obtenues à 1.5 Tesla en pompant respectivement sur les raies f_{2m} et f_{4m} décalée de 1 GHz dans le sens des fréquences décroissantes et nous nous limitons aux expériences réalisées dans les cellules cylindriques de volume identique. Nous les comparons aux résultats du pompage optique en faible champ magnétique. Les résultats à 1.33 mbar sont pris des références [Sto96a], [Led00] et [Gen93]. Les résultats aux pressions élevées correspondent à des expériences complémentaires à notre étude et présentées dans le paragraphe 7.1. Les résultats de pompage en faible champ magnétique et à 1.5 Tesla correspondent à des puissances de laser pompe différentes.

TAB. 5.3 – Polarisation stationnaire M_{stat} , temps de construction t_b et taux de production de l'aimantation R_a (Eq.5.2) en fonction de la pression du gaz et la puissance laser utilisée pour le pompage optique dans des cellules cylindriques de dimensions 5 cm×5 cm. Les résultats correspondent aux données représentées dans la Fig.5.13.

	Raie	Pression mbar	T_1 dech s	P_{las} W	M_{stat}	t_b s	$ R_a $ mbar/s
1.5 T	f_{4m}	8	2100	0.5 (0.25)	0.62 (0.59)	70 (85)	0.072 (0.056)
1.5 T	f_{4m}	32	1490	0.5 (0.25)	0.40 (0.35)	96 (183)	0.134 (0.062)
1.5 T	f_{4m}	67	1190	0.5 (0.25)	0.29 (0.26)	117 (203)	0.165 (0.085)
1.5 T	f_{2m}	8	2100	0.5 (0.25)	-0.75 (-0.71)	120 (118)	0.051 (0.048)
1.5 T	f_{2m}	32	1490	0.5 (0.25)	-0.56 (-0.49)	138 (214)	0.131 (0.074)
1.5 T	f_{2m}	67	1190	0.5 (0.25)	-0.37 (-0.28)	180 (300)	0.137 (0.062)
[Sto96a]	C ₉	1	270	0.05	0.50	40	0.013
[Led00]	C ₉	1.33	400	1.1	0.56	11	0.068
[Gen93]	C ₉	1.33	900	4.5	0.78	6.5	0.160
3 mT	C ₉	8	448	2 (0.25)	0.32 (0.21)	21 (79)	0.123 (0.021)
3 mT	C ₉	67	280	2 (0.25)	0.07 (0.04)	32 (130)	0.146 (0.021)

À 1.5 Tesla, des polarisations et des taux de production de l'aimantation comparables aux performances du pompage optique standard sont obtenus avec des puissances laser plus faibles. À 8 mbar, de fortes polarisations allant jusqu'à -0.75 sont atteintes. De plus, les taux R_a obtenus à 8 mbar sont comparables aux résultats obtenus en pompage optique standard à 1 mbar. Par ailleurs, les temps de construction de la polarisation ne se rallongent pas proportionnellement à la pression du gaz. En pompant aux pressions plus fortes, il est possible d'obtenir des taux de

production de l'aimantation compétitifs avec ceux obtenus par pompage optique en faible champ. De surcroît, ce gain en R_a ne s'accompagne pas d'une perte considérable en polarisation M_{stat} . Ceci peut s'expliquer par le fait qu'en dépit du découplage hyperfin, le pompage optique à 1.5 Tesla conserve un bon rendement quantique : tout photon effectivement absorbé par les atomes dépose son moment cinétique au niveau des atomes (paragraphe 6.2.2).

D'un point de vue expérimental, d'importantes améliorations visant des augmentations de R_a peuvent être envisagées. À titre d'exemple, nous pourrions utiliser des cellules de diamètre réduit pour augmenter la densité d'atomes métastables interagissant avec le laser pompe.

5.4.2 Intérêts pour les applications médicales

Les résultats de pompage optique obtenus à 1.5 Tesla ouvrent des perspectives intéressantes pour l'Imagerie par Résonance Magnétique des cavités pulmonaires qui nécessite des échantillons denses et fortement polarisés.

Dans cette perspective d'applications, le nouveau schéma de polarisation de l'hélium-3 à 1.5 Tesla ouvre la voie au développement d'un polariseur de gaz *in-situ* qui serait simple, compact et parfaitement compatible avec l'environnement hospitalier. Ce polariseur de gaz utiliserait le champ magnétique de l'imageur clinique, et opérerait par exemple en tête de lit de l'imageur. Il comporterait une cellule de pompage optique de 300 cm³ contenant du gaz à 32 mbar ou 67 mbar. Une source laser à 1083 nm fibrée et délivrant une puissance de l'ordre du Watt pourrait être utilisée pour polariser les atomes. Afin de porter le gaz à la pression atmosphérique, une compression d'un facteur 1 : 30 ou 1 : 15 au lieu de 1 : 1000 serait requise. Ce nouveau polariseur présenterait alors un avantage principal par rapport aux polariseurs existants : une simplification considérable de la procédure de compression. Par ailleurs, et à cause des absorptions élevées de la lumière laser par les atomes métastables, l'utilisation de cellules courtes permettrait une compactification du système polariseur. Une autre caractéristique avantageuse de ce polariseur repose sur la séparation spectrale des transitions optiques correspondant à une lumière polarisée circulaire droite et circulaire gauche (paragraphe 2.1.3); ce qui fait que l'excitation d'une transition A_i-B_j se fait par un choix simultané de la polarisation de la lumière et de sa fréquence. Une excellente polarisation du faisceau pompe n'est alors plus essentielle, comme c'est le cas pour les polariseurs opérant en faible champ magnétique [Led00], [Wol04].

Différents modes de fonctionnement du polariseur peuvent être considérés :

- i-* Pour l'imagerie du petit animal ou pour des mesures globales chez l'homme : Après compression du gaz contenu dans la cellule de 300 cm³ à 32 mbar, des doses de 10 cm³ polarisées à $M_{stat} = 0.5$ peuvent être préparées en moins de 5 min. Ces volumes sont convenables pour l'imagerie des poumons d'un cochon d'Inde ou d'un

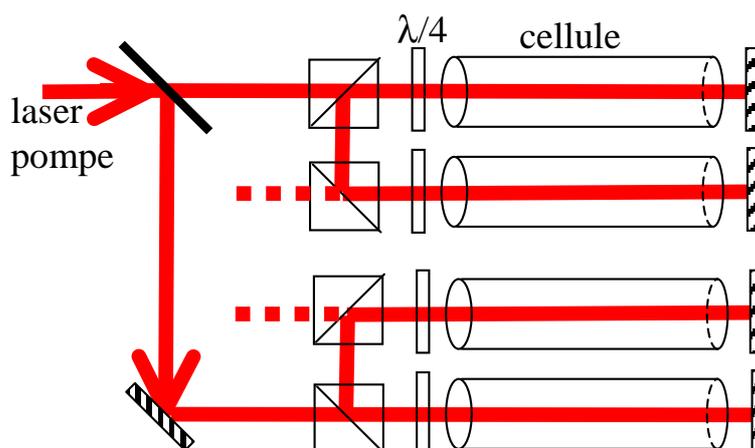


FIG. 5.15 – Schéma représentatif du polariseur où quatre cellules montées en parallèle sont utilisées pour le pompage optique.

rat. La préparation en ligne de ces doses peut également être envisagée.

ii- Pour l'imagerie des poumons humains :

Les performances d'un tel polariseur ne seraient pas adaptées pour l'imagerie des poumons humains. Dans de telles conditions, préparer une dose de 300 cm^3 , inhalable et polarisée à $M_{stat} = 0.5$ prendrait près de 2.5 h. Pour améliorer ce rendement, il faut polariser le gaz simultanément dans plusieurs cellules montées en parallèle. Cette solution est mise en place dans le polariseur de Mayence où 5 cellules de pompage optique sont montées en parallèle et deux lasers délivrant chacun 15 W sont utilisés [Eck92]. Dans le cas du polariseur à 1.5 Tesla, moins de puissance laser totale et des cellules de moindre volume seraient utilisées. Quatre cellules de pompage y seraient montées et un laser de puissance 2 W serait utilisé pour le pompage (Fig.5.15). Le taux de production de l'aimantation serait réduit d'un facteur 4 et la préparation d'une dose de 300 cm^3 prendrait près de 45 min.

Alternativement à la compression 1 : 30 ou 1 : 15, les résultats de pompage optique à 1.5 Tesla et aux pressions élevées permettent de préparer des doses par dilution du gaz polarisé. Il suffit pour cela de porter le gaz polarisé à la pression atmosphérique par ajout d'un gaz tampon comme le diazote. Nous illustrons dans la Fig.5.16 la variation de la quantité Polarisation \times Pression, proportionnelle à l'aimantation dans la cellule en fonction de la pression. Quand le pompage optique est effectué à 32 ou 67 mbar et à 1.5 Tesla, plus d'un facteur 10 est gagné au niveau de l'aimantation totale préparée dans l'échantillon par rapport au pompage à 1 mbar. Ce gain en aimantation totale préparée dans l'échantillon se manifeste au niveau du signal détectable par résonance magnétique nucléaire. La dilution du gaz, qui est la méthode la plus simple, peut être utilisée efficacement dans des expériences de RMN ne nécessitant pas des polarisations élevées [Dar98].

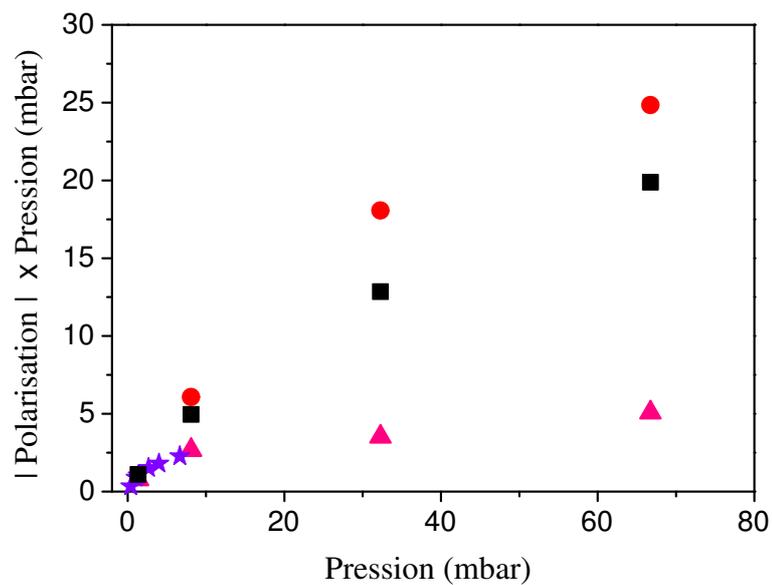


FIG. 5.16 – Variation de la quantité Polarisation \times Pression, proportionnelle à l’aimantation dans la cellule (et donc pour la résonance magnétique nucléaire au signal total détectable) en fonction de la pression. Les étoiles [Gen93] et triangles (Fig.1.3) correspondent aux résultats obtenus par pompage optique en faible champ magnétique. Les cercles et les carrés correspondent respectivement aux résultats de pompage à 1.5 Tesla sur la raie f_{2m} et le flanc gauche de la raie f_{4m} .

D'un point de vue économique, et même si les études des effets du champ magnétique sur les performances du pompage optique pourraient montrer la présence d'un champ magnétique optimal pour le pompage optique par échange de métastabilité, un polariseur de gaz à 1.5 Tesla présente un avantage majeur puisque près de 20 000 imageurs opèrent en routine clinique à 1.5 Tesla à travers le monde.

Chapitre 6

Interprétation des résultats expérimentaux

Dans ce chapitre, nous procédons à une comparaison entre les résultats de mesures expérimentales et les résultats numériques du modèle à 7 populations. Nous nous appuyons pour cette étude sur les mesures et résultats expérimentaux décrits dans le paragraphe 5.3. Ces mesures sont effectuées à toutes les pressions en variant la puissance laser pompe incidente, dans des plasmas favorables au pompage optique. Le choix d'une décharge douce où $T_1 \text{ dech} \geq 1000$ s garantit une faible contribution des processus de relaxation dus à la présence du plasma.

La construction de la polarisation M par pompage optique dépend de plusieurs paramètres atomiques : les populations relatives a_i des sous-niveaux métastables, la densité d'atomes métastables n_m via le taux d'échange de métastabilité dans le niveau fondamental Γ_e et le taux de relaxation de la polarisation dans le niveau fondamental Γ_1 (Eq.2.61). Les caractéristiques du laser pompe, à savoir sa fréquence et son intensité, suffisent pour déterminer les populations relatives des sous-niveaux. La densité de métastables n_m ainsi que le taux de relaxation de la polarisation Γ_1 sont deux paramètres plus difficiles à déterminer expérimentalement dans les conditions de pompage.

Dans le paragraphe 6.1, nous nous penchons sur la question de la détermination de la densité d'atomes métastables en nous basant sur les mesures d'absorption du faisceau pompe. Nous mettons ainsi en évidence une augmentation de la densité d'atomes métastables en fonction de la polarisation électronique du niveau métastable. Des mesures complémentaires de variation de densité de métastables sont aussi présentées.

Dans le paragraphe 6.2, nous comparons les résultats des mesures expérimentales aux prédictions numériques à $M = 0$, une situation dans laquelle les processus de relaxation n'affectent pas l'évolution de M . Nous décrivons

les rendements quantiques η des schémas de pompage optique à 1.5 Tesla. Nous présentons également une comparaison entre des résultats expérimentaux et numériques dans le cas d'un pompage multi-transitions où il est possible, en désaccordant la fréquence du laser pompe par rapport au centre de la raie, d'améliorer les performances du pompage optique.

Finalement, dans le paragraphe 6.3, nous procédons à la mise en évidence de processus de relaxation supplémentaire induite par le laser pompe, qui affectent la polarisation nucléaire et limitent les polarisations stationnaires obtenues aux pressions élevées.

6.1 Détermination de la densité de métastables

La densité d'atomes métastables interagissant avec le laser pompe est un paramètre vital dans le calcul numérique de l'évolution de la polarisation. Dans nos conditions expérimentales, les atomes métastables ne sont pas uniformément répartis dans la cellule (paragraphe 5.2.2). Et comme le faisceau sonde est aligné perpendiculairement au champ magnétique, il n'interagit pas avec les mêmes atomes que le laser pompe parallèle au champ magnétique. Par suite, nous ne pouvons nous servir des mesures d'absorption du faisceau sonde intégrée le long de son trajet pour déterminer précisément la densité d'atomes métastables le long de l'axe de la cellule pendant la construction de la polarisation.

Par ailleurs, nous avons mesuré dans le cadre de nos expériences les absorptions du faisceau pompe à intensité de pompage. Nous disposons de deux familles de mesures. Une première famille comporte les absorptions mesurées à $M = 0$ que nous notons $Abs_{\parallel}(M = 0)$; ces dernières sont mesurées "au vol" pendant la construction de la polarisation. Une deuxième famille comprend les absorptions mesurées à M_{stat} que nous notons $Abs_{\parallel}(M_{stat})$. Comme ces mesures sont effectuées à l'état stationnaire correspondant à l'équilibre entre les atomes et le laser, elles sont plus précises que les mesures à $M = 0$.

Nous nous servons de l'ensemble de ces mesures d'absorption pour déterminer la densité d'atomes métastables dans les conditions de pompage et pour définir le cadre dans lequel nous utilisons le modèle numérique.

6.1.1 Approche supposant une densité de métastables constante

Dans nos expériences, nous avons mesuré à $M = 0$ l'absorption du faisceau pompe fortement atténué, d'intensité laser $< 1 \mu\text{W}/\text{cm}^2$. Cette mesure d'absorption permet de calculer très simplement la densité d'atomes métastables intégrée le

long de l'axe de la cellule. Nous notons cette valeur de la densité de métastables n_m^0 .

L'approche la plus simple que nous pouvons adopter pour comparer les résultats expérimentaux aux résultats numériques repose sur l'hypothèse que la densité d'atomes métastables est indépendante de la polarisation et de l'intensité du laser pompe. Par ailleurs, toutes les conditions du pompage sont parfaitement déterminées expérimentalement : la puissance du laser pompe, la surface du faisceau pompe, la raie de pompage, la fréquence du laser et la pression du gaz.

Nous sommes ainsi en mesure d'utiliser le modèle numérique pour calculer en présence du laser pompe les populations relatives des sous-niveaux, donc l'absorption du faisceau pompe par les atomes métastables.

À 8 mbar, les calculs d'absorption $Ab_{s\parallel}(M = 0)$ du faisceau pompe accordé sur la raie de pompage et à $M = 0$ ne sont pas en accord avec les mesures expérimentales comme le montrent les graphes de la Fig.6.1. Nous y représentons en fonction de la puissance laser incidente au niveau de la cellule les mesures d'absorption du faisceau pompe accordé sur la raie de pompage f_{2m} ou le flanc gauche de f_{4m} et à $M = 0$ après un aller-retour dans la cellule. Nous observons une diminution de l'absorption du laser pompe au fur et à mesure que la puissance du laser augmente. Cette diminution résulte de l'apparition d'une polarisation M^* importante à forte intensité. Mais, même si la variation globale de l'absorption est reproduite par les calculs numériques, des écarts jusqu'à près d'un facteur 2 sont observés entre les résultats expérimentaux et les résultats numériques. De la même façon, les mesures d'absorption $Ab_{s\parallel}(M_{stat})$ effectuées dans la cellule de 8 mbar et à M_{stat} ne sont pas bien reproduites par le modèle. Ces différences indiquent que la densité de métastables utilisée dans le modèle pour reproduire les résultats expérimentaux est sous-estimée. Elles portent à croire que la densité de métastables est affectée par la présence du laser pompe et par la polarisation.

6.1.2 Approche déterminant la densité de métastables à partir des mesures d'absorption

Comme les absorptions du faisceau pompe en conditions de pompage après un aller retour dans la cellule sont mesurées expérimentalement à $M = 0$ et à M_{stat} , nous pouvons déterminer les densités de métastables en adoptant une autre approche. Celle-ci consiste à utiliser le modèle numérique pour calculer les densités d'atomes métastables $n_{m\parallel}(M = 0)$ et $n_{m\parallel}(M_{stat})$ cohérentes avec les absorptions mesurées. La puissance du laser pompe, la surface du faisceau pompe, la raie de pompage, la fréquence du laser et la pression du gaz sont déterminées expérimentalement.

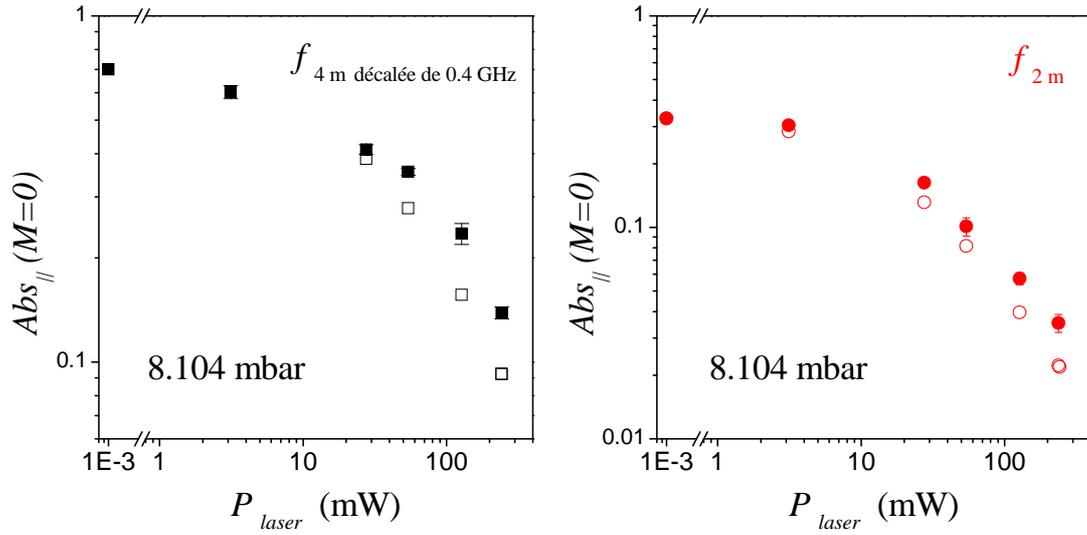


FIG. 6.1 – Variation de l’absorption du laser pompe par les atomes métastables en fonction de la puissance laser P_{laser} incidente au niveau de la cellule de pompage optique à 8 mbar. Les symboles pleins correspondent aux résultats expérimentaux ; les symboles creux correspondent aux résultats numériques obtenus en supposant la densité de métastables constante $n_m^0 = 3.49 \times 10^{16} \text{ at/m}^3$. Les cercles et carrés correspondent respectivement aux mesures lors d’un pompage sur la raie f_{2m} et le flanc gauche de la raie f_{4m} .

Nous illustrons dans la Fig.6.2 les densités de métastables calculées à $M = 0$ à 8 mbar. À gauche, nous représentons en fonction de la puissance laser incidente les absorptions du faisceau pompe accordé sur la raie de pompage (f_{2m} ou le flanc gauche de f_{4m}) mesurées à M_{stat} . À droite, nous représentons les densités de métastables calculées. Nous indiquons également la valeur n_m^0 de la densité de métastables utilisée dans le paragraphe 6.1.1 et déterminée à partir des mesures d'absorption d'un faisceau pompe atténué à $M = 0$. Nous observons une augmentation de la densité de métastables par rapport à n_m^0 à toutes les puissances laser.

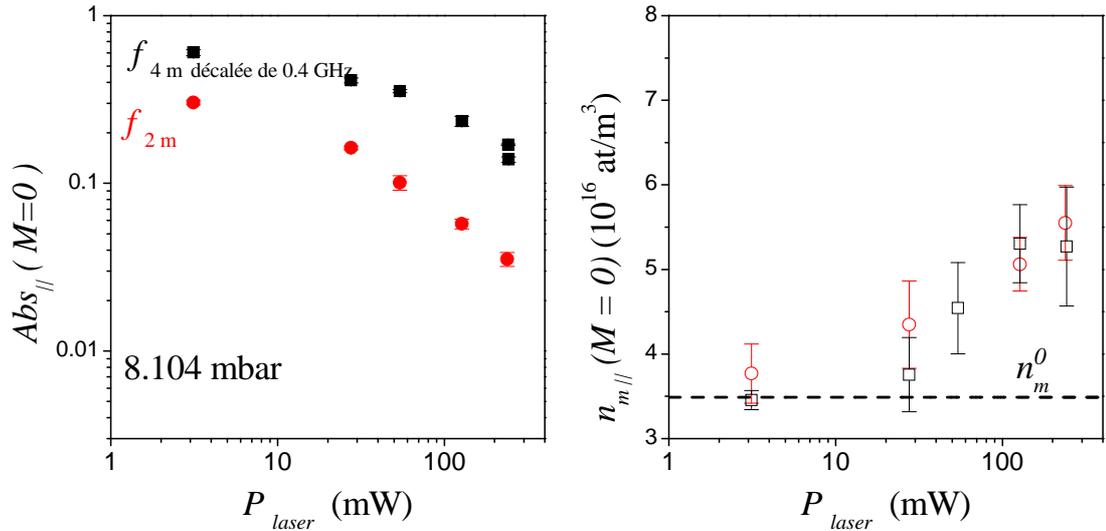


FIG. 6.2 – Nous présentons en fonction de la puissance laser incidente P_{laser} à 8 mbar : à gauche, les mesures expérimentales de l'absorption $Abs_{\parallel}(M = 0)$ du faisceau pompe accordé sur la raie de pompage et à droite, les valeurs numériques de $n_{m\parallel}(M = 0)$ déduites des mesures d'absorption. Les barres d'erreur découlent des incertitudes expérimentales sur les mesures d'absorption. Les cercles et carrés correspondent à un pompage sur la raie f_{2m} et le flanc gauche de la raie f_{4m} . La courbe en pointillés représente la valeur de n_m^0 .

Un calcul identique est effectué à M_{stat} aux pressions 8 mbar, 32 mbar et 67 mbar. Les résultats sont illustrés dans la Fig.6.3. À gauche, nous représentons en fonction de la puissance laser incidente les absorptions du faisceau pompe accordé sur la raie de pompage (f_{2m} ou le flanc gauche de f_{4m}) mesurées à M_{stat} . Les polarisations stationnaires correspondantes sont reportées dans les Figs.5.11 et 5.12. À droite, nous représentons les densités de métastables calculées. Nous indiquons également la valeur de la densité de métastables n_m^0 utilisée dans le paragraphe 6.1.1 et déterminée à partir des mesures d'absorption d'un faisceau pompe atténué à $M = 0$. À toutes les pressions, une augmentation de la densité

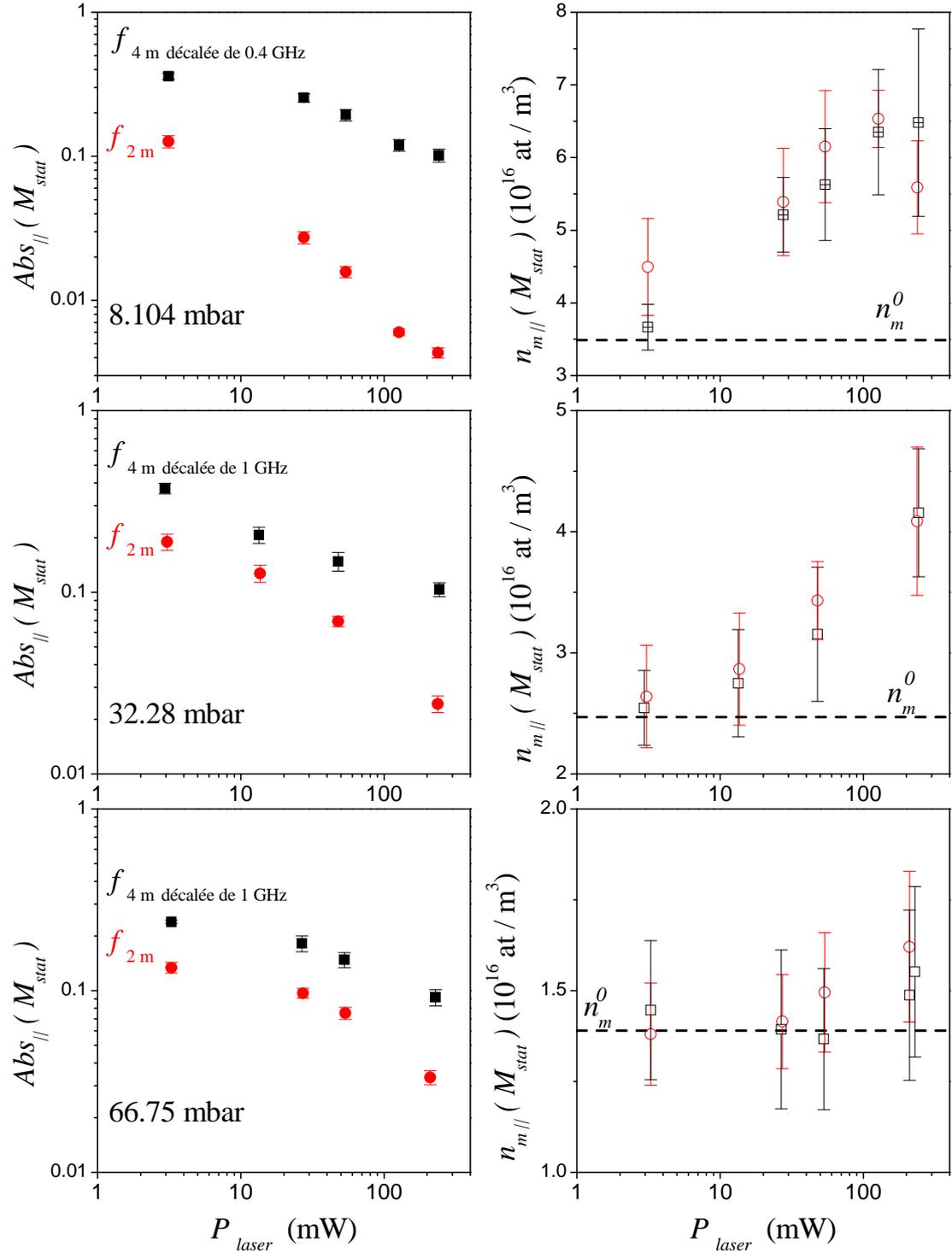


FIG. 6.3 – Nous présentons en fonction de la puissance laser incidente P_{laser} : à gauche, les mesures expérimentales de l'absorption $Abs_{\parallel}(M_{stat})$ du faisceau pompe accordé sur la raie de pompe et à droite, les valeurs numériques de $n_{m\parallel}(M_{stat})$ déduites des mesures d'absorption. Les barres d'erreur découlent des incertitudes expérimentales sur les mesures d'absorption. Les cercles et carrés correspondent à un pompage sur la raie f_{2m} et le flanc gauche de la raie f_{4m} . La courbe en pointillés représente la valeur de n_m^0 .

de métastables par rapport à n_m^0 est obtenue à M_{stat} .

Nous en déduisons que pour réconcilier les résultats numériques et expérimentaux, nous devons supposer que la densité d'atomes métastables varie avec l'intensité laser et avec la polarisation, sauf peut être pour la plus forte pression où la taille de l'effet est faible.

6.1.3 Dépendance de la densité de métastables vis à vis de l'orientation électronique du niveau métastable

Rôle joué par l'orientation électronique

Pour un même plasma, en pompant sur les deux raies et à toutes les pressions étudiées, les mesures d'absorption $Abs_{\parallel}(M = 0)$ et $Abs_{\parallel}(M_{stat})$ du faisceau pompe à $M = 0$ (Fig.6.2) et à M_{stat} (Fig.6.3) sont cohérentes avec des densités de métastables supérieures à n_m^0 . Cette augmentation de la densité d'atomes métastables induite par la présence du laser pompe peut être expliquée par une inhibition des collisions Penning auto-ionisantes :



La section efficace de ces collisions dépend fortement de la polarisation électronique de l'échantillon. Pour un échantillon polarisé, des calculs théoriques prévoient une importante réduction des collisions de Penning pour des raisons de conservation du spin lors du processus collisionnel [Shl94], [Fed96]. Ces prédictions ont été vérifiées expérimentalement dans le contexte des condensats de Bose-Einstein d'hélium-4 métastable [Her00].

Nous notons $\langle J_z^* \rangle$ la valeur moyenne du moment angulaire électronique dans le niveau métastable et correspondant à l'orientation électronique des atomes métastables localisés géométriquement dans le volume éclairé par le laser pompe. À 1.5 Tesla, et étant donné la répartition des sous-niveaux métastables en trois paires de sous-niveaux (Fig.2.2), nous pouvons écrire :

$$\begin{aligned} \langle J_z^* \rangle &= (a_5 - a_1) + a_3s_+ - a_2c_- + a_6c_+ - a_4s_- \\ &\sim -(a_1 + a_2) + (a_5 + a_6) \end{aligned} \quad (6.2)$$

En absence d'un laser pompe, les populations relatives a_1 , a_2 , a_5 et a_6 des sous-niveaux respectifs A_1 , A_2 , A_5 et A_6 sont dictées par la distribution en température de spin. En présence du laser pompe, leurs valeurs numériques respectives peuvent être calculées en utilisant le modèle à 7 populations. Nous pouvons aussi calculer les densités d'atomes métastables cohérentes avec les absorptions du faisceau pompe mesurées à $M = 0$ et à M_{stat} .

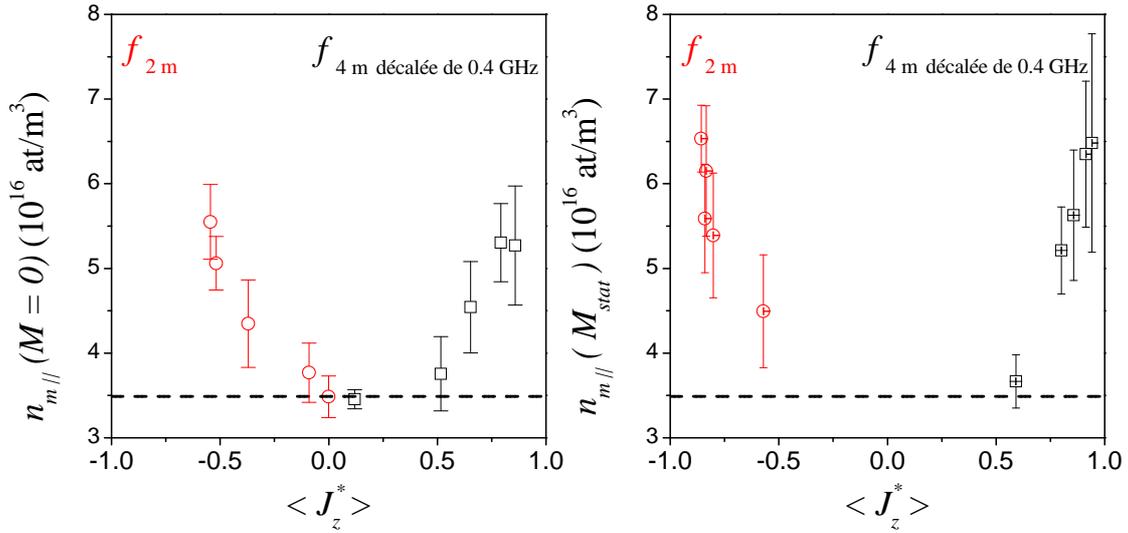


FIG. 6.4 – Nous présentons en fonction de l’orientation électronique du niveau métastable $\langle J_z^* \rangle$ les prédictions numériques de $n_{m||}(M = 0)$ (à gauche) et $n_{m||}(M_{stat})$ (à droite) déduites des mesures expérimentales de l’absorption $Abs_{||}(M = 0)$ et $Abs_{||}(M_{stat})$ à 8 mbar. Les barres d’erreur découlent des incertitudes expérimentales sur les mesures d’absorption. Les cercles et carrés correspondent à un pompage sur la raie f_{2m} et le flanc gauche de la raie f_{4m} . La courbe en pointillés représente la densité d’atomes métastables n_m^0 déterminée par la mesure d’absorption d’un faisceau pompe atténué.

Les résultats de variation de la densité d'atomes métastables en fonction de $\langle J_z^* \rangle$ à 8 mbar sont représentés dans la Fig.6.4. Une nette augmentation de la densité d'atomes métastables par rapport à n_m^0 est observée à 8 mbar. À $M = 0$ et en présence d'un laser intense, l'orientation électronique dans le niveau métastable peut être élevée et proche dans certains cas de l'unité.

Aux pressions élevées, $\langle J_z^* \rangle$ est plus faible qu'à 8 mbar et l'augmentation de la densité de métastables avec $\langle J_z^* \rangle$ est moins importante qu'à 8 mbar. Les valeurs numériques des $n_{m\parallel}(M_{stat})$ aux deux fortes pressions (32 mbar et 67 mbar) sont représentées dans la Fig.6.5.

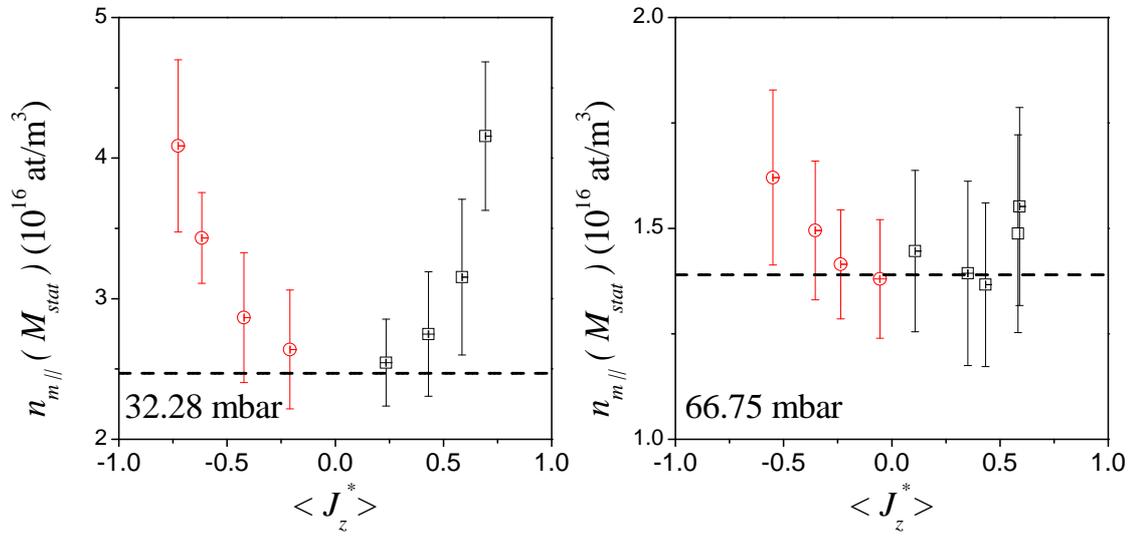


FIG. 6.5 – Nous présentons en fonction de l'orientation électronique du niveau métastable $\langle J_z^* \rangle$ les prédictions de $n_{m\parallel}(M_{stat})$ déduites des mesures expérimentales de l'absorption $Abs_{\parallel}(M_{stat})$ à 32 mbar (à gauche) et à 67 mbar (à droite). Les barres d'erreur découlent des incertitudes expérimentales sur les mesures d'absorption. Les cercles et carrés correspondent à un pompage sur la raie f_{2m} et le flanc gauche de la raie f_{4m} . La courbe en pointillés représente la densité d'atomes métastables n_m^0 déterminée par la mesure d'absorption d'un faisceau pompe atténué.

La variation de la densité d'atomes métastables en fonction de l'orientation électronique du niveau métastable $\langle J_z^* \rangle$ et à toutes les pressions est résumée dans la Fig.6.6. Toutes ces valeurs sont les résultats des calculs cohérents avec les mesures d'absorption du laser pompe. La dépendance de la densité de métastables vis à vis de $\langle J_z^* \rangle$ permet de réconcilier entre elles, non seulement les mesures effectuées à $M = 0$ et à M_{stat} , mais les mesures effectuées à toutes les pressions.

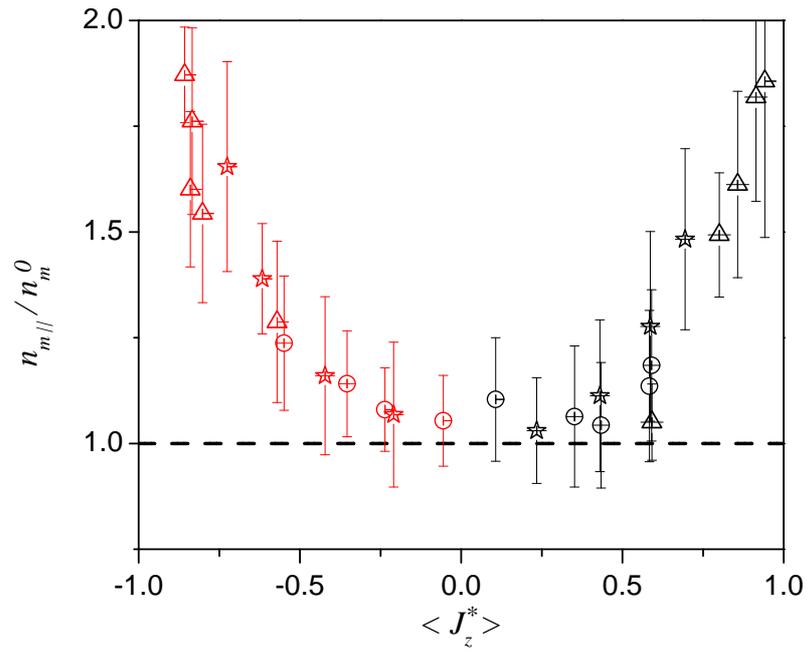


FIG. 6.6 – Variation relative de la densité d’atomes métastables en fonction de l’orientation électronique du niveau métastable $\langle J_z^* \rangle$ à 8 mbar (triangles), 32 mbar (étoiles) et 67 mbar (cercles). $n_{m||}/n_m^0$ est le rapport entre la densité de métastables en présence d’un laser pompe (Figs.6.4 et 6.5) et la densité de métastables n_m^0 déduite d’une mesure d’absorption d’un faisceau pompe atténué. Les barres d’erreur découlent des incertitudes expérimentales sur les mesures d’absorption.

Vérification expérimentale directe

Dans notre étude, nous avons effectué des mesures de vérification de l'augmentation de la densité d'atomes métastables avec $\langle J_z^* \rangle$. Pour cela, nous nous sommes servis d'un montage expérimental où le faisceau sonde et le faisceau pompe sont tous les deux parallèles au champ magnétique de 1.5 Tesla ; par la suite les deux lasers interagissent avec les mêmes atomes (paragraphe 7.3). Les mesures expérimentales sont effectuées dans la cellule cylindrique (5 cm×5 cm) à 8 mbar. Le plasma est tel que $T_{1\ dech} = 820$ s et $n_m^0 = (3.57 \pm 0.20) \times 10^{16}$ at/m³ correspondant à $\langle J_z^* \rangle = 0$. Nous représentons dans la Fig.6.7 la variation relative de la densité d'atomes métastables en fonction de $\langle J_z^* \rangle$. Les différents symboles

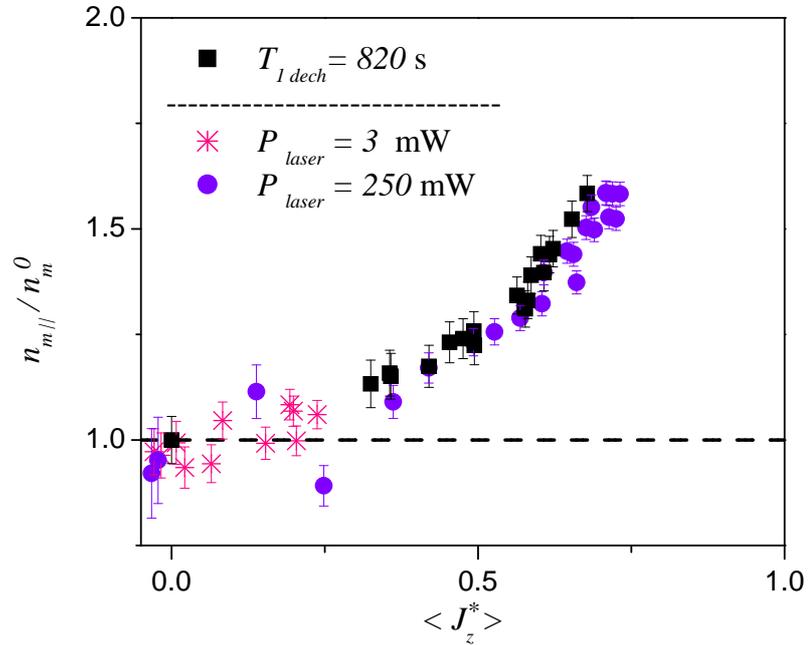


FIG. 6.7 – Nous présentons en fonction de l'orientation électronique du niveau métastable $\langle J_z^* \rangle$ à 8 mbar la variation relative de la densité d'atomes métastables. $n_{m||}/n_m^0$ représente l'augmentation de la densité de métastables par rapport à sa valeur à $\langle J_z^* \rangle = 0$. Les barres d'erreur découlent des incertitudes expérimentales sur les mesures d'absorption du faisceau sonde.

correspondent à trois situations expérimentales :

1. les carrés correspondent à une mesure en absence d'un laser pompe. Le gaz est initialement polarisé puis nous enregistrons la relaxation de la polarisation en présence du plasma.
2. les astérisques correspondent à un exemple de construction de la polarisation avec une puissance laser incidente $P_{laser} = 3$ mW.

3. les cercles correspondent à un exemple de construction de la polarisation avec une puissance laser incidente $P_{laser} = 250$ mW.

En absence du laser pompe, les populations des sous-niveaux métastables sont dictées par la distribution en température de spin. En présence du laser pompe, cette distribution est perturbée par les processus de surpolarisation (paragraphe 4.2.2) ; nous utilisons alors le modèle à 7 populations pour calculer les populations. Une fois que les populations relatives des sous-niveaux métastables sont connues, les absorptions du faisceau sonde sont utilisées pour calculer les densités d'atomes métastables cohérentes. L'augmentation de la densité d'atomes métastables, observée à partir des mesures expérimentales en absence et en présence d'un laser pompe, est en parfait accord avec les valeurs numériques de densités de métastables déduites des mesures expérimentales d'absorption du faisceau pompe. Nous avons également observé et mesuré cette dépendance de la densité de métastables avec $\langle J_z^* \rangle$ à 67 mbar.

6.1.4 Effets de diffusion aux faibles pressions

Comme décrit dans le paragraphe 2.5.2, l'interaction entre les atomes et le laser dépend de la distribution spatiale des atomes dans la cellule de pompage. Jusqu'ici, pour tenir compte de cette distribution dans notre modélisation, nous avons divisé la cellule en deux zones : une zone éclairée par le faisceau laser où les atomes métastables sont surpolarisés par le laser pompe et une zone obscure (hors du faisceau laser) où les populations des atomes métastables suivent une distribution en température de spin. En présence d'un découplage hyperfin important, plusieurs collisions d'échange sont nécessaires pour qu'un atome métastable perde complètement sa surpolarisation. Soit Δt le temps correspondant. Durant ce temps, l'atome peut diffuser à la frontière entre les deux zones.

Nous pouvons alors imaginer que la zone éclairée a un diamètre effectif supérieur au diamètre géométrique du faisceau laser. L'élargissement du diamètre par rapport au diamètre géométrique peut être approximativement évalué en se plaçant dans le contexte du modèle à 6 populations décrit dans le paragraphe 2.3. Suite à un pompage f_{4m} , la valeur moyenne du moment angulaire nucléaire dans la paire de sous-niveaux (A_5, A_6) s'écrit à $M = 0$:

$$\langle I_z \rangle = s_+ \frac{\hbar}{2} \quad (6.3)$$

Par ailleurs, dans ces conditions, l'atome dispose d'un moment cinétique total $\langle F_z \rangle = \hbar$. Lors d'une collision d'échange de métastabilité, un atome perd la fraction $s_+/2$ de son moment cinétique si bien que près de $2/s_+$ collisions, soit près de 400 collisions sont requises à 1.5 Tesla pour qu'un tel atome perde tout son moment cinétique. Étant donné que deux collisions d'échange de métastabilité sont

temporellement espacées de $1/\gamma_e$, nous avons :

$$\Delta t = \frac{400}{\gamma_e} \quad (6.4)$$

Le mouvement de diffusion des atomes conduirait alors à des déplacements δ [Diu89] :

$$\delta = \sqrt{6D\Delta t} \quad (6.5)$$

de l'ordre de 1 mm à 8 mbar ; D étant le coefficient de diffusion de l'hélium ($D = 1.708 \times 10^3 \text{ cm}^2/\text{s}$ à 1 mbar) [Bid03]. Dès lors, nous pouvons imaginer dans la cellule, en plus des deux zones (éclairée et obscure), une zone intermédiaire ou une "peau" qui tient compte de ce processus. Il est clair que cet effet d'élargissement de la zone éclairée perd de son importance aux pressions élevées.

À 8 mbar, la prise en compte de l'effet de "peau" permettrait de réconcilier les résultats expérimentaux de $Abs_{\parallel}(M = 0)$ et les prédictions numériques du modèle à 7 populations sans invoquer une variation de la densité de métastables. Dans la Fig.6.8, nous représentons en fonction de la puissance laser les valeurs expérimentales d'absorptions $Abs_{\parallel}(M = 0)$ et les valeurs numériques calculées grâce aux mesures de n_m^0 . En considérant un diamètre effectif de la zone éclairée élargi de 2 mm par rapport au diamètre géométrique du faisceau laser, nous réconcilions les mesures expérimentales et numériques. Toutefois, les valeurs expérimentales de $Abs_{\parallel}(M_{stat})$ à M_{stat} restent supérieures aux prédictions numériques (voir Fig.6.9). L'effet de "peau" ne permet pas de les réconcilier entre elles.

Même si un effet de "peau" est probablement présent à faible pression, il ne permet pas à lui seul d'expliquer nos résultats expérimentaux et une variation de la densité d'atomes métastables par rapport à la valeur n_m^0 reste nécessaire pour décrire nos mesures expérimentales. Nous retenons donc l'idée que la densité de métastables dépend de l'orientation électronique $\langle J_z^* \rangle$ et nous nous plaçons dans ce cadre pour procéder à la comparaison entre l'expérience et la théorie dans les paragraphes 6.2 et 6.3.

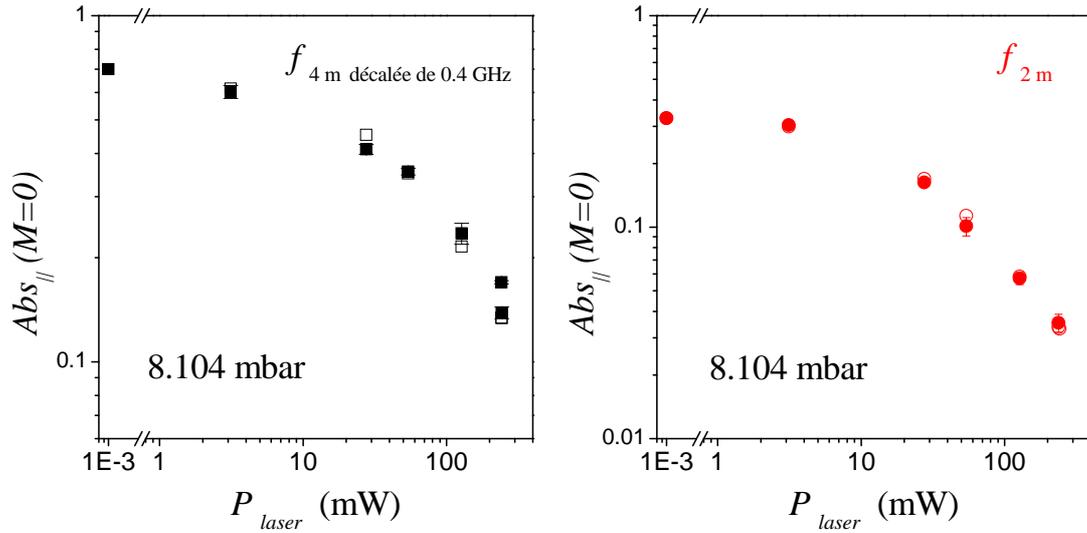


FIG. 6.8 – Variation de l’absorption du laser pompe par les atomes métastables en fonction de la puissance laser P_{laser} incidente au niveau de la cellule de pompage optique à 8 mbar et à $M = 0$. Les symboles pleins correspondent aux résultats expérimentaux ; les symboles creux correspondent aux calculs obtenus dans le cadre “effet de peau” en utilisant les densités d’atomes métastables mesurées à $M = 0$ et en absence d’un laser pompe ; le diamètre de la zone éclairée est agrandi de 2 mm par rapport au diamètre géométrique du faisceau laser. Les cercles et carrés correspondent aux mesures lors d’un pompage sur la raie f_{2m} et le flanc gauche de la raie f_{4m} .

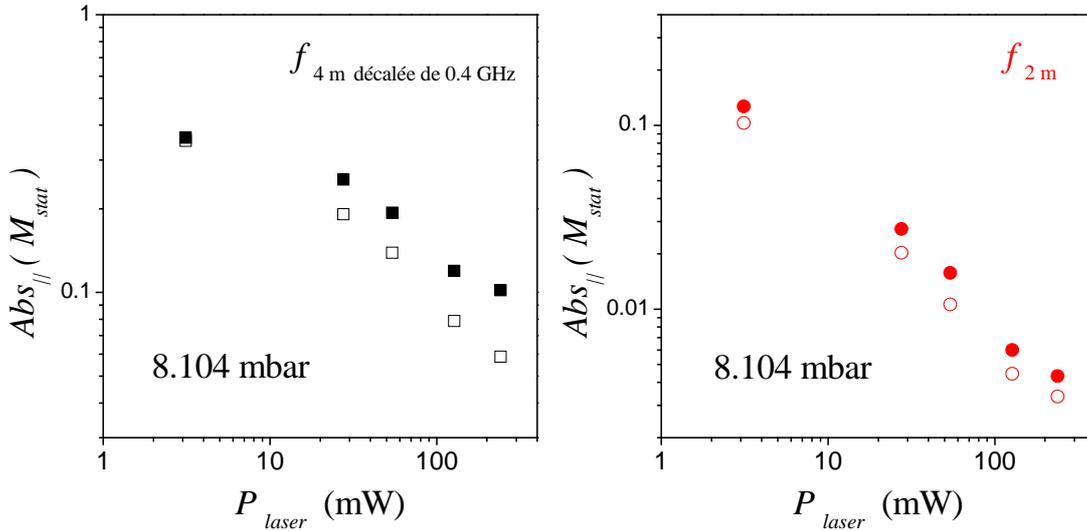


FIG. 6.9 – Variation de l’absorption du laser pompe par les atomes métastables en fonction de la puissance laser P_{laser} incidente au niveau de la cellule de pompage optique à 8 mbar et à M_{stat} . Même légende que la Fig.6.8.

6.2 Analyse des résultats à $M = 0$

Maintenant que la densité de métastables est déterminée dans le cadre d'un calcul cohérent avec les mesures d'absorption du faisceau pompe, le seul paramètre non mesuré duquel dépend la polarisation M est le temps de relaxation dans le niveau fondamental $1/\Gamma_1$. À $M = 0$, comme tous les résultats en sont indépendants, nous pouvons procéder à une comparaison directe entre l'expérience et la théorie.

6.2.1 Taux de pompage $dM/dt_{(M=0)}$

Nous nous concentrons d'abord sur la quantité $dM/dt_{(M=0)}$ caractérisant la dynamique du pompage et nous présentons dans la Fig.6.10 les résultats expérimentaux des taux de pompage à 8 mbar. Les valeurs expérimentales de

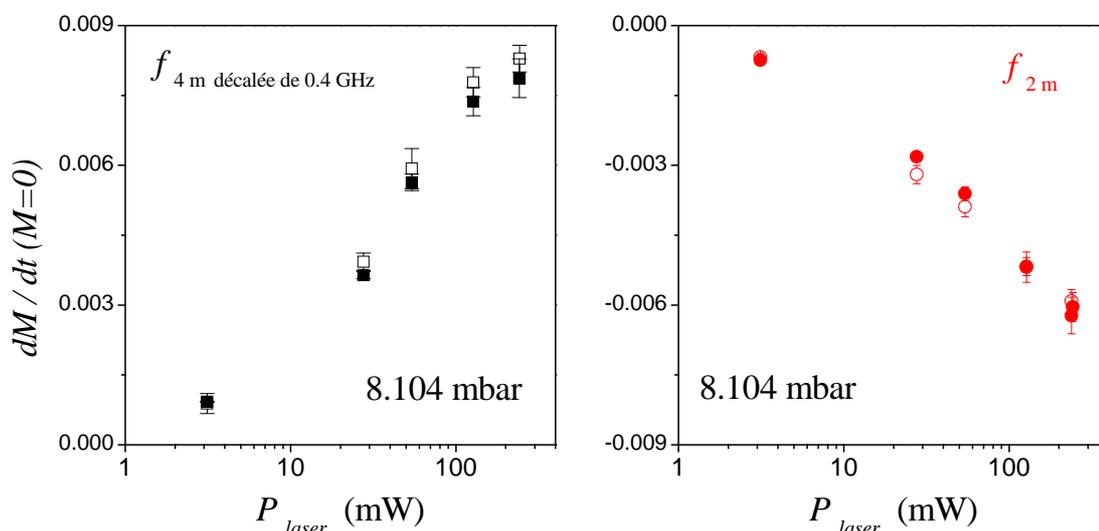


FIG. 6.10 – Variations de $dM/dt_{(M=0)}$ en fonction de la puissance laser incidente P_{laser} . Les cercles et carrés correspondent à un pompage sur la raie f_{2m} et sur le flanc gauche de la raie f_{4m} . Les symboles pleins et creux correspondent respectivement aux résultats expérimentaux (Eq.4.16) et numériques calculées avec les densités de métastables déduites des mesures d'absorption du laser pompe à $M = 0$ (illustrées dans la Fig.6.4). Les barres d'erreur résultent des incertitudes expérimentales sur les mesures d'absorption.

$dM/dt_{(M=0)}$ sont déterminées à partir des mesures de M_{stat} et de t_b en utilisant l'Eq.4.16. Pour les valeurs numériques, nous nous servons des mesures expérimentales d'absorption du faisceau pompe à $M = 0$ afin de déterminer les densités d'atomes métastables cohérentes avec ces mesures (Fig.6.4). Les barres d'erreur découlent des incertitudes expérimentales sur les mesures d'absorption. Un bon accord est obtenu.

6.2.2 Rendement quantique à $M = 0$

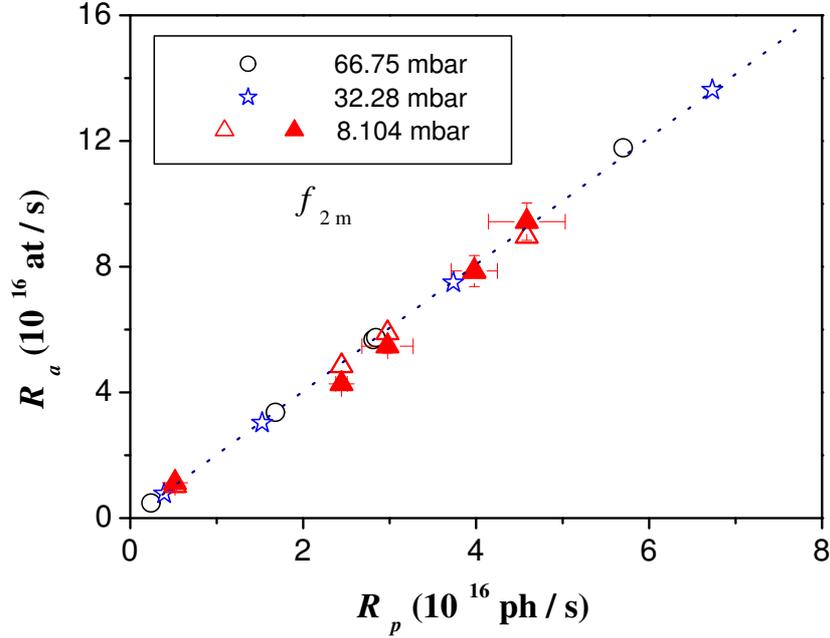


FIG. 6.11 – Rendement quantique du processus de pompage optique à 1.5 Tesla et à $M = 0$ sur la raie f_{2m} . Nous représentons le nombre d’atomes polarisés par seconde R_a en fonction du nombre de photons R_p absorbés par seconde à $M = 0$. Les symboles pleins et creux correspondent respectivement aux résultats expérimentaux et numériques. Expérimentalement, le rendement quantique η de la raie f_{2m} est 1.96 ± 0.06 , en bon accord avec les prédictions numériques.

Une caractéristique intrinsèque du schéma de pompage est le rendement quantique du processus (ou “photon efficiency”). Le rendement quantique η est défini comme le nombre d’atomes polarisés par unité de temps R_a divisé par le nombre de photons absorbés par unité de temps R_p . Dans nos cellules cylindriques de dimensions internes $4.6 \text{ cm} \times 4.6 \text{ cm}$, R_a (exprimé en at/s) (Eq.5.2) et R_p (exprimé en ph/s) sont calculés d’après :

$$\begin{aligned}
 R_a(\text{at/s}) &= \frac{dM}{dt}_{(M=0)} P(\text{mbar}) \times 1.87 \times 10^{18} \\
 R_p(\text{ph/s}) &= Abs_{\parallel}(M=0) \frac{P_{laser}(\text{W})}{\hbar\omega}
 \end{aligned}
 \tag{6.6}$$

Les valeurs expérimentales et numériques de R_a et R_p sont reportées dans la Fig.6.11. Nous obtenons un bon accord pour le rendement quantique. Pour la raie f_{2m} , nous trouvons $\eta^{exp} = 1.96 \pm 0.06$ alors que la valeur numérique est de $\eta^{th} = 2.00 \pm 0.03$. La raie f_{4m} a quant à elle un rendement quantique inférieur

à celui de la raie f_{2m} . Expérimentalement, nous trouvons $\eta^{exp} = 0.74 \pm 0.05$, en bon accord avec la valeur numérique de l'ordre de l'unité, selon le désaccord par rapport au centre de f_{4m} . Pour un désaccord de 0.4 GHz dans le sens des fréquences décroissantes, le modèle numérique prédit $\eta^{th} = 0.82 \pm 0.04$.

Nous pouvons utiliser le raisonnement suivant pour retrouver de façon plus simple les rendements quantiques des raies f_{4m} et f_{2m} . Nous considérons un cycle de pompage optique comportant l'absorption, la redistribution collisionnelle dans le 2^3P et l'émission spontanée. Nous supposons également que les deux éléments de transition T_{ij} (Table 2.1) composant les raies f_{2m} sont égaux entre eux. De même pour les quatre éléments T_{ij} composant f_{4m} . Nous obtenons, dans le cas de la raie f_{2m} et après un cycle de pompage optique, une variation de moment angulaire $\langle \Delta m_F \rangle = -1$ et pour la raie f_{4m} une variation $\langle \Delta m_F \rangle = 1/2$ dans le niveau métastable. Comme les collisions d'échange de métastabilité conservent le moment cinétique, nous nous retrouvons dans l'état fondamental de moment angulaire purement nucléaire $I = 1/2$ avec une variation de populations telle que $\langle \Delta(N_\uparrow - N_\downarrow) \rangle = -2$ pour un pompage f_{2m} et $\langle \Delta(N_\uparrow - N_\downarrow) \rangle = 1$ pour f_{4m} .

Ces rendements quantiques sont assez élevés et importants par comparaison avec le pompage optique de l'hélium-3 par échange de spin où η est de l'ordre de 0.02-0.05 ou même au pompage optique hybride (K-Rb) par échange de spin où η est de l'ordre de 0.25 [Bar98], [Bab03].

Le pompage optique à 1.5 Tesla conserve les propriétés intrinsèques du pompage optique par échange de métastabilité et en champ magnétique faible : malgré le découplage hyperfin, tout photon effectivement absorbé dépose efficacement son moment cinétique au niveau des atomes, et contribue ainsi à la construction de la polarisation nucléaire.

6.2.3 Effets du désaccord lors d'un pompage multi-transitions

Dans ce paragraphe, nous étudions expérimentalement et numériquement l'influence du désaccord de la fréquence du laser pompe par rapport au centre d'une raie de pompage multi-transitions (comme les raies f_{4m} , f_{4p} , f_{2m} et f_{2p}) sur les résultats du pompage optique. Comme expliqué dans le paragraphe 2.1.3, ces raies intenses sont propices au pompage optique. Toutefois, ces raies présentent des comportements particuliers résultant de l'action cumulée (conjuguée ou antagoniste) des transitions atomiques qui les composent.

Pompage f_{4m}

Comme présenté dans le paragraphe 5.1, les résultats du pompage sur la raie f_{4m} dépendent considérablement du désaccord de la fréquence du laser par rapport au centre de f_{4m} . Ainsi, les résultats expérimentaux du pompage sont améliorés si un désaccord de 1 GHz environ (flanc gauche de la raie f_{4m} Fig.2.5) est choisi.

Le modèle numérique à 7 populations prédit des comportements identiques. Nous illustrons la variation du terme source ($M^* - M$) en fonction de la fréquence du laser pompe accordée sur la raie f_{4m} dans la Fig.6.12. Le calcul numérique est effectué pour $\gamma_p/\gamma_e = 0.6$ à 8 mbar. Ce qui correspondrait à un faisceau laser de diamètre 16 mm, de puissance 500 mW et effectuant un aller retour dans la cellule.

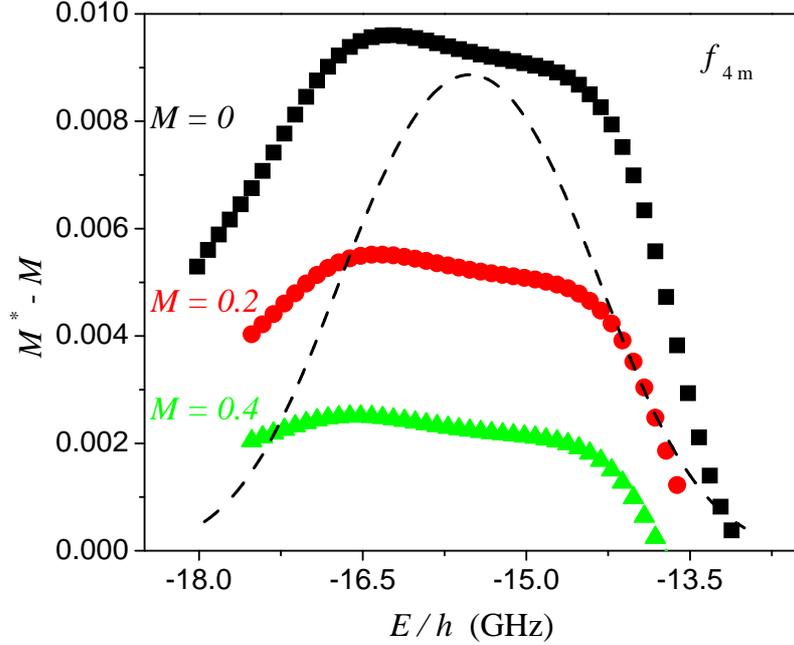


FIG. 6.12 – Exemple de résultats numériques illustrant la variation du terme source ($M^* - M$) en fonction de l'accord en fréquence du laser pompe sur la raie f_{4m} à trois valeurs de M . Ces résultats sont obtenus à 8 mbar avec $\gamma_p/\gamma_e = 0.6$. Ce qui correspondrait à un faisceau laser de diamètre 16 mm, de puissance 500 mW et effectuant un aller retour dans la cellule. Nous représentons à titre indicatif le profil d'absorption correspondant à la raie atomique (en pointillés).

L'augmentation du terme source observée en se décalant du centre de la raie dans le sens des fréquences décroissantes s'explique par une inhibition de l'action de la transition A_3-B_5 qui excite, contrairement aux trois autres transitions, un sous-niveau de $m_F > 0$. En effet, l'action conjuguée de l'excitation des trois transitions A_1-B_1 , A_2-B_2 et A_4-B_6 se traduit par un transfert important de la population du côté des $m_F > 0$. L'action de l'excitation de la transition A_3-B_5 se trouve alors favorisée par rapport à celle des trois autres. La réduction de la contribution de A_3-B_5 est réalisée expérimentalement en désaccordant vers le rouge la fréquence du laser pompe par rapport au centre de la raie. La valeur numérique du désaccord optimal peut à son tour dépendre de la polarisation nucléaire car plus la polarisation nucléaire est élevée, plus l'action de A_3-B_5 est favorisée.

Pompage f_{2m}

Même si la raie f_{2m} est constituée de transitions atomiques excitant des sous-niveaux dont les m_F sont de même signe, des comportements particuliers sont également observés dans ce pompage. Nous illustrons ce comportement dans la Fig.6.13 : la variation du terme source ($M^* - M$) y est représentée en fonction de la fréquence du laser pompe accordée sur la raie f_{2m} . Le calcul numérique est

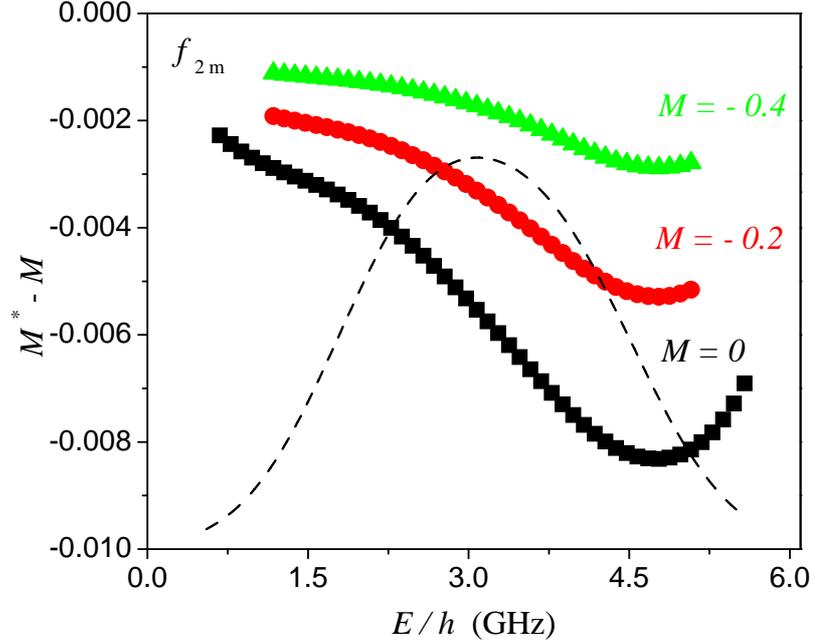


FIG. 6.13 – Exemple de résultats numériques illustrant la variation du terme source ($M^* - M$) en fonction de l'accord en fréquence du laser pompe sur la raie f_{2m} . Même légende que Fig.6.12.

effectué pour $\gamma_p/\gamma_e = 0.6$ à 8 mbar. En désaccordant vers le bleu la fréquence du laser pompe par rapport au centre de la raie f_{2m} , une augmentation du terme source est obtenue à toutes les valeurs de polarisation. Ce qui signifie que la paire de sous-niveaux (A_5, A_6) excitée pendant un pompage f_{2m} est mieux dépeuplée. Comme nous avons procédé à une modélisation systématique après avoir effectué les expériences, cet effet n'avait pas été anticipé et notre étude expérimentale systématique a été faite en pompant sur le centre de la raie f_{2m} .

Des résultats expérimentaux récents obtenus à 8 mbar à Cracovie (paragraphe 7.3) en variant le désaccord du laser pompe par rapport au centre de la raie f_{2m} sont confrontés aux prédictions du modèle numérique dans la Fig.6.14. Nous y représentons la variation de $dM/dt_{(M=0)}$ en fonction de la fréquence du laser pompe. Les polarisations stationnaires obtenues varient entre -0.65 et -0.70 . L'ef-

fet du désaccord est très clairement observé, et les mesures expérimentales donnent des résultats tout à fait comparables aux calculs numériques.

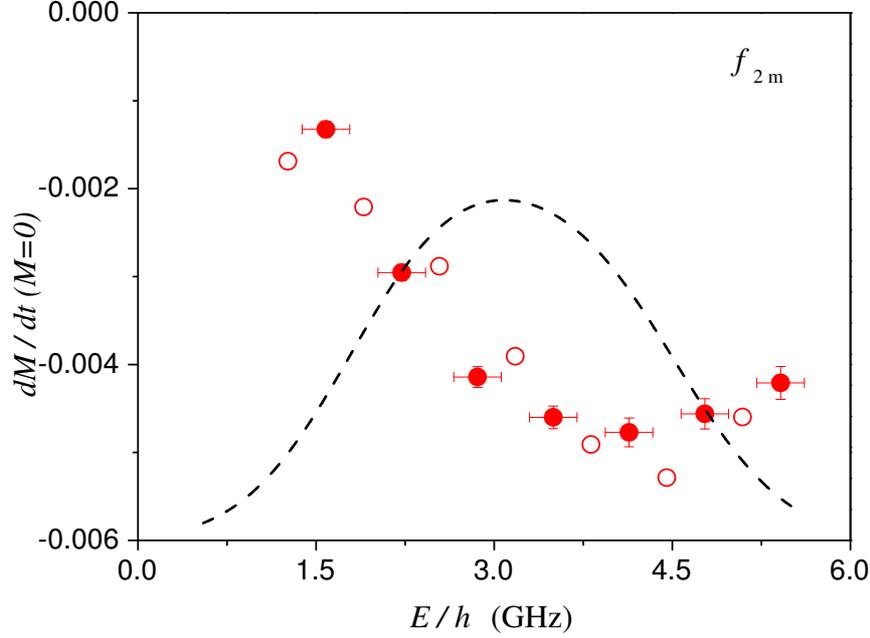


FIG. 6.14 – Variations du taux de pompage $dM/dt_{(M=0)}$ en fonction de la fréquence du laser pompe à 8 mbar. Le faisceau pompe, effectuant un aller retour dans la cellule, a un diamètre de 20 mm et une puissance de 250 mW (paragraphe 7.3). Les symboles pleins et creux correspondent respectivement aux résultats expérimentaux et numériques calculés avec une densité de métastables de 2.41×10^{16} at/m³. Nous représentons en pointillés le profil d'absorption correspondant à la raie f_{2m} .

6.3 Analyse des résultats à l'état stationnaire

6.3.1 Calculs des polarisations stationnaires

Nous avons montré dans le paragraphe 2.4.2 qu'il existe des limitations intrinsèques du schéma de pompage optique à 1.5 Tesla dans le régime des fortes puissances laser au fur et à mesure que la pression augmente. Or, même aux relativement faibles puissances laser utilisées dans nos expériences, le modèle numérique utilisé dans le cadre des conditions expérimentales des résultats des Figs.5.11 et 5.12 prédit, surtout pour les pressions élevées, des polarisations stationnaires supérieures à celles mesurées expérimentalement. Ceci est illustré dans la Fig.6.15, où nous représentons en fonction de la puissance laser incidente les

valeurs stationnaires de polarisation M_{stat} mesurées et calculées. Les polarisations stationnaires sont calculées en considérant comme seul processus de relaxation la contribution de la décharge $\Gamma_{1\ dech}$ (Eq.2.53) et en utilisant les densités d'atomes métastables $n_{m\parallel}(M_{stat})$ de la Fig.6.3. À 8 mbar, de très légers écarts sont observés. Ces différences sont beaucoup plus importantes à 32 mbar et 67 mbar. De plus, elles augmentent avec la puissance laser incidente sur la cellule. Des processus de relaxation supplémentaire de la polarisation dans l'état fondamental et intervenant pendant le pompage optique pourraient expliquer cet écart, comme présenté dans le paragraphe 6.3.2.

6.3.2 Évaluation de la relaxation pendant le pompage

Une façon d'évaluer les écarts entre les valeurs expérimentales et les prédictions numériques de M_{stat} consiste à évaluer un taux de relaxation affectant la polarisation dans l'état fondamental et à l'utiliser dans les calculs pour avoir des prédictions numériques compatibles avec nos mesures. Plus particulièrement, nous évaluons le taux de relaxation supplémentaire de la polarisation due à la présence du laser pompe $\Gamma_{1\ laser}$.

À $M = M_{stat}$, comme l'état stationnaire ou d'équilibre entre le laser et les atomes est atteint, nous pouvons écrire $dM/dt = 0$. Après un ajustement des densités d'atomes métastables $n_{m\parallel}(M_{stat})$ grâce aux mesures d' $Abs_{\parallel}(M_{stat})$ (Fig.6.3), toutes les conditions expérimentales sont parfaitement connues. Nous pouvons déterminer, en utilisant le modèle numérique, la valeur du terme source de l'Eq.2.61. Par la suite, nous en déduisons les taux de relaxation longitudinale de la polarisation dans le niveau fondamental Γ_1 . Γ_1 inclut toutes les contributions de relaxation : la relaxation due au plasma entretenu dans la cellule $\Gamma_{1\ dech}$ (Eq.2.53, mesuré expérimentalement d'après la méthode décrite dans le paragraphe 4.3.2) ainsi qu'une relaxation supplémentaire notée $\Gamma_{1\ laser}$ intervenant pendant la phase de construction de la polarisation dans la cellule de pompage optique.

Les résultats numériques de $\Gamma_{1\ laser}$ correspondant aux mesures présentées dans les Figs.5.11 et 5.12 sont reportés dans la Fig.6.16. Les taux de relaxation de la polarisation en présence du laser $\Gamma_{1\ laser}$ y sont représentés en fonction de n_P , la densité d'atomes dans l'état excité 2^3P en présence du laser pompe et à M_{stat} . Les barres d'erreur découlent des incertitudes sur les mesures expérimentales d' $Abs_{\parallel}(M_{stat})$. Les plus grands taux de relaxation $\Gamma_{1\ laser}$ sont observés pour des pompages multi-transitions f_{4m} . À faible pression (ici 8 mbar), les valeurs numériques des $\Gamma_{1\ laser}$ sont comparables ou inférieures à celles de $\Gamma_{1\ dech}$. Aux pressions élevées, les $\Gamma_{1\ laser}$ sont du même ordre de grandeur ou plus grands que les taux $\Gamma_{1\ dech}$. De plus, pour les trois pressions considérées expérimentalement et indépendamment de la raie de pompage, nous observons une augmentation de $\Gamma_{1\ laser}$ au fur et à mesure que la densité d'atomes dans le niveau 2^3P augmente, donc au fur et à mesure que la

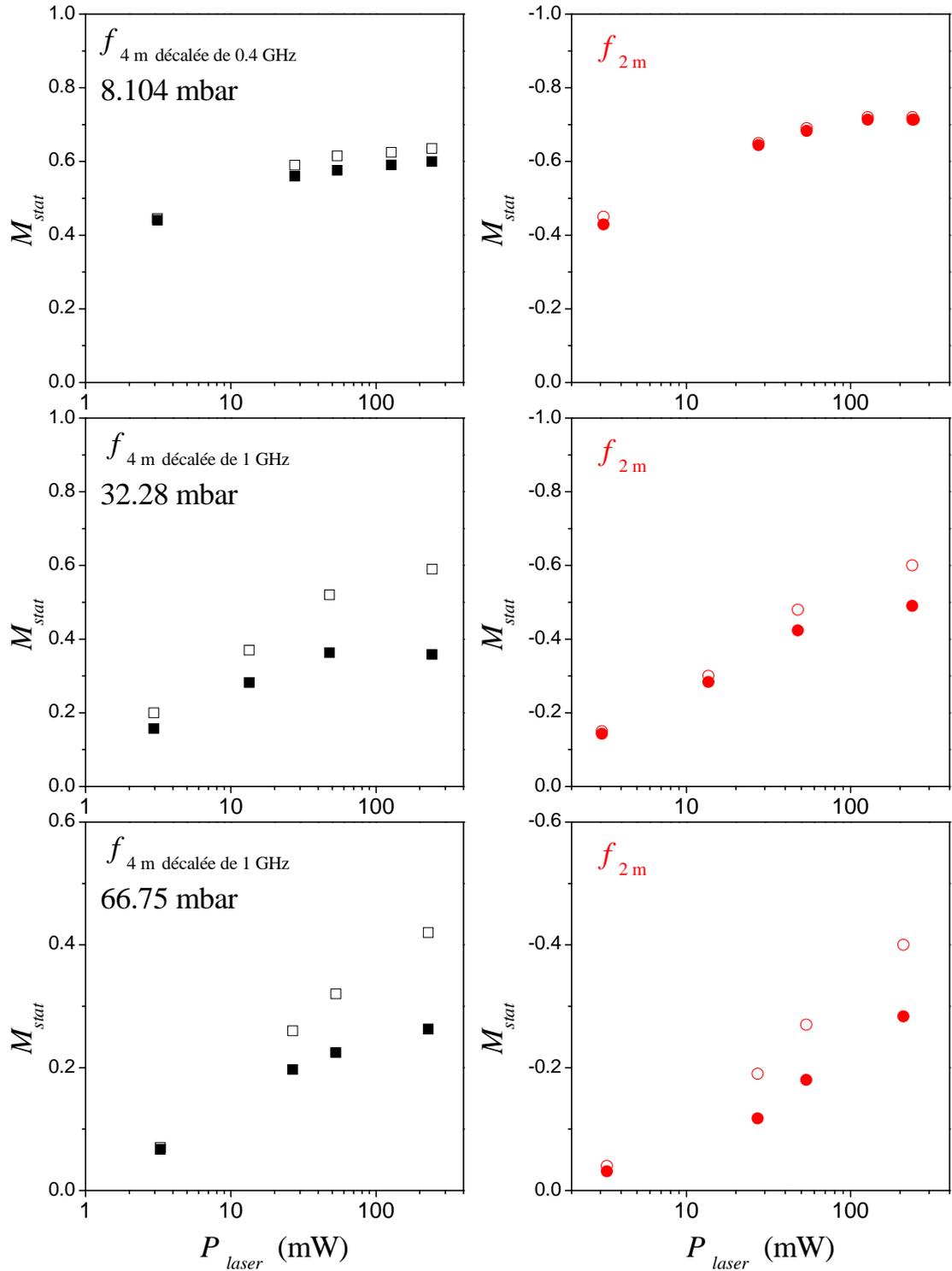


FIG. 6.15 – Variation de la polarisation stationnaire en fonction de la puissance laser incidente P_{laser} . Les symboles pleins correspondent aux résultats expérimentaux ; les symboles creux correspondent aux résultats obtenus en utilisant les densités d'atomes métastables calculées $n_{m \parallel}(M_{stat})$ et en considérant comme processus de relaxation la contribution de la décharge (voir texte). Les cercles et carrés correspondent aux mesures lors d'un pompage sur la raie f_{2m} (graphes à droite) et sur le flanc gauche de la raie f_{4m} (graphes à gauche).

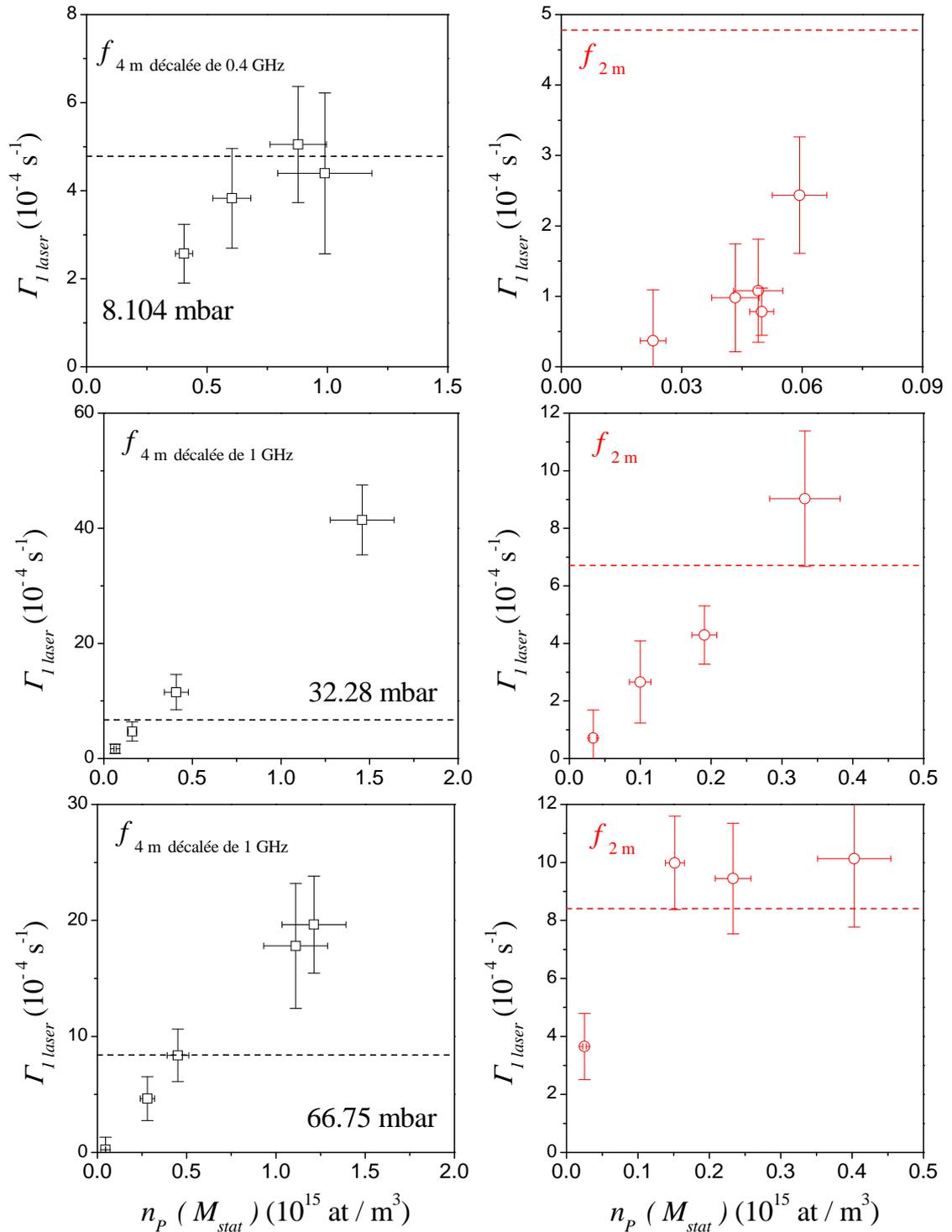


FIG. 6.16 – Variation de $\Gamma_{1 \text{ laser}}$ en fonction de n_P , la densité d'atomes portés dans le niveau excité 2^3P en présence du laser pompe et à M_{stat} (voir texte). Les cercles et carrés correspondent aux mesures lors d'un pompage sur la raie $f_{2 \text{ m}}$ (graphes à droite) et sur le flanc gauche de la raie $f_{4 \text{ m}}$ (graphes à gauche). Les barres d'erreur découlent des incertitudes expérimentales sur les mesures d' $Abs_{||}(M_{stat})$. Les traits horizontaux en pointillés correspondent aux $\Gamma_{1 \text{ dech}}$ croissant avec la pression.

puissance laser est élevée. Des ajustements linéaires de $\Gamma_{1\ laser}$ en fonction de n_P donnent les pentes présentées dans la table 6.1.

TAB. 6.1 – Pentes obtenues des ajustements linéaires des données de la Fig.6.16 et correspondant à la variation de $\Gamma_{1\ laser}$ en fonction de n_P .

	$f_{4\ m}$ $10^{-18}\ \text{s}^{-1}/(\text{at}/\text{m}^3)$	$f_{2\ m}$ $10^{-18}\ \text{s}^{-1}/(\text{at}/\text{m}^3)$
8 mbar	0.59 ± 0.08	2.21 ± 0.35
32 mbar	2.84 ± 0.01	2.69 ± 0.11
67 mbar	1.67 ± 0.11	3.22 ± 0.58

Dans la Fig.6.16, nous avons supposé que la relaxation de la polarisation induite par la présence du laser pompe est la conséquence d’une modification du plasma partout dans la cellule (*e.g.* si le pompage optique crée des espèces excitées diffusant dans toute la cellule). Si par contre, nous supposons que la relaxation agit seulement dans le volume de la cellule éclairé par le faisceau pompe, la modification locale du taux de relaxation sera beaucoup plus importante, d’un facteur de l’ordre de 8 correspondant au rapport entre le volume total de la cellule $V_{cellule}$ et le volume de la cellule éclairé par le laser pompe V_{laser} .

6.3.3 Interprétations de la relaxation pendant le pompage

Nous considérons et discutons dans ce paragraphe la signification et la pertinence de deux processus physiques pouvant être invoqués pour expliquer la proportionnalité de $\Gamma_{1\ laser}$ avec n_P . Il s’agit des effets de dépompage dus à une réabsorption de la lumière diffusée dans la cellule et des processus de création des molécules homonucléaires métastables.

Effets de dépompage dus à une réabsorption de la lumière diffusée dans la cellule

Comme présenté dans le chapitre 2, nous n’avons pas considéré dans notre modèle numérique les effets de réabsorption de la lumière diffusée dans la cellule de pompage optique (par absorption et émission spontanée). Or, il est connu que ces effets peuvent s’avérer gênants, voire même limitants dans certaines conditions expérimentales (milieux optiquement épais). Dans ce paragraphe, nous nous proposons d’évaluer leur ordre de grandeur et de discuter dans quelle mesure

ils contribueraient à la relaxation de la polarisation nucléaire.

Nous considérons dans ce qui suit un photon réemis au centre de la cellule et nous montrons que la probabilité qu'il soit réabsorbé sur une transition qui dépompe est de l'ordre de $1/60$. Pour remédier à la complexité du calcul exact de la puissance lumineuse réabsorbée P_{reab} , nous nous proposons de déterminer une estimation pour P_{reab} .

Nous assimilons la cellule cylindrique de pompage optique de dimensions $5\text{ cm} \times 5\text{ cm}$ à un cube. En tenant compte du miroir de renvoi (voir le schéma expérimental reproduit dans la Fig.3.5) et des angles solides, la longueur effective parcourue par le photon est $1/6 \times 3L/2 + 5/6 \times L/2 = 2/3 \times L$, où L est la longueur de la cellule (ou arête du cube).

Nous considérons maintenant le cas d'absorption maximale dans nos conditions expérimentales : à 8 mbar et en accordant le laser pompe sur la raie f_{4m} , les absorptions mesurées sur un aller-retour dans la cellule et à $M = 0$ sont de l'ordre de 0.6 pour une faible puissance laser. Il s'ensuit que pour une transition telle que $T_{ij} = 1$, l'absorption sur la distance effective $2L/3$ dans la cellule est de l'ordre de $1/20$.

En pompage Dehmelt sur la raie f_{4m} , la probabilité pour que la lumière émise par émission spontanée soit à une fréquence susceptible d'être absorbée par les deux sous-niveaux A_5 et A_6 est égale à $2/6$ soit $1/3$. En négligeant l'effet de M sur les populations et en ne considérant que les transitions intenses ($T_{ij} \sim 1$), nous pouvons estimer la puissance réabsorbée à $P_{reab} = 1/3 \times 1/20 \times P_{abs} = P_{abs}/60$, où P_{abs} est la puissance laser initialement absorbée.

Pour chaque condition expérimentale de pompage sur la raie f_{4m} , nous pouvons donc calculer le nombre de photons réabsorbés par unité de temps. En utilisant le rendement quantique du pompage optique sur les sous-niveaux A_5 et A_6 (égal à 2), le nombre de photons réabsorbés par unité de temps est converti en un nombre d'atomes dépolarisés par unité de temps. Un terme de dépompage $(dM/dt)_{depo}$, proportionnel à n_P et à $1/N_g$, peut être évalué d'après l'Eq.6.6 et par la suite nous déduisons les valeurs des taux de relaxation de la polarisation sous l'effet de ce processus $\Gamma_{1\ depo} = (dM/dt)_{depo}/M_{stat}$.

Un calcul similaire peut être mené pour un pompage sur la raie f_{2m} ; dans ce cas, la probabilité pour que la lumière émise par émission spontanée soit à une fréquence susceptible d'être absorbée par les quatre sous-niveaux A_1 , A_2 , A_3 et A_4 est égale à $2/3$ et le rendement quantique du pompage optique sur ces quatre sous-niveaux pour évaluer le nombre d'atomes dépolarisés est égal à 1. Il en résulte une puissance réabsorbée égale aussi à $P_{abs}/60$.

Les valeurs numériques correspondant à nos conditions expérimentales de polarisation stationnaire, de pression et de puissance laser sont illustrées dans la Fig.6.17. À 8 mbar, les valeurs de taux de dépompage $\Gamma_{1\ depo}$ sont inférieures mais

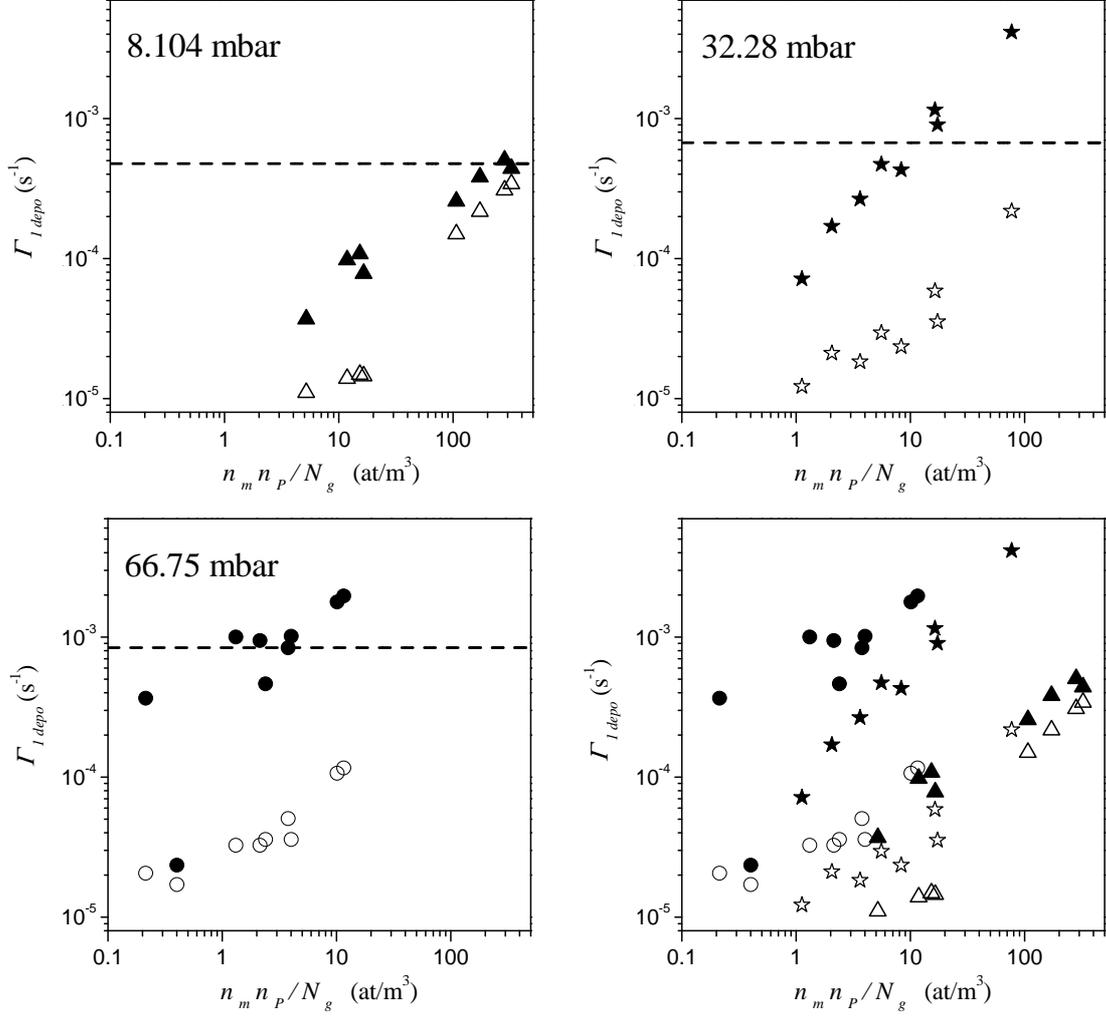


FIG. 6.17 – Variation de $\Gamma_{1\text{depo}}$ (symboles creux) en fonction du produit $n_m n_p / N_g$, n_m étant la densité d’atomes métastables à M_{stat} , n_p la densité d’atomes portés dans le niveau excité 2^3P en présence du laser pompe et à M_{stat} et N_g la densité d’atomes dans le niveau fondamental. Les symboles pleins correspondent aux valeurs de $\Gamma_{1\text{laser}}$. Les résultats sont relatifs aux trois pressions étudiées 8 mbar (triangles), 32 mbar (étoiles) et 67 mbar (cercles). Les traits horizontaux en pointillés correspondent aux $\Gamma_{1\text{dech}}$ relatifs à chacune des trois pressions.

comparables à celles de $\Gamma_{1\ laser}$ (voir les triangles pleins et creux dans la Fig.6.17). Par contre, aux pressions élevées, les valeurs de $\Gamma_{1\ depo}$ sont nettement plus faibles que celles de $\Gamma_{1\ laser}$ (comparer les étoiles et les cercles pleins et creux entre eux dans la Fig.6.17) et celles dues à la contribution du plasma $\Gamma_{1\ dech}$ (comparer les étoiles et les cercles creux aux traits horizontaux en pointillés dans la Fig.6.17). Par la suite, les écarts (voir Fig.6.15) obtenus entre les polarisations stationnaires mesurées et celles calculées ne peuvent pas être expliqués par des processus de dépompage liés à une réabsorption de la lumière diffusée dans la cellule de pompage optique.

Processus de création des molécules métastables

Des collisions à trois corps accompagnées d'une formation de molécules He_2^* métastables peuvent être suspectées d'être à l'origine de la relaxation supplémentaire $\Gamma_{1\ laser}$. En effet, la molécule homonucléaire d'hélium-3 dans le niveau métastable $a^3\Sigma_u^+$ est peuplée par la cascade radiative dans le plasma. Mais une lumière intense à 1083 nm maintient une population dans l'état 2^3P où un atome peut former par interaction avec deux atomes dans l'état fondamental la molécule $\text{He}_2(b^3\Pi_g)$: c'est un canal supplémentaire de formation de la molécule d'hélium, s'ajoutant à celui qui implique des atomes dans l'état 2^3S_1 , et cent fois plus efficace [Emm88, Zha93]. Ces molécules participeraient alors à des collisions similaires aux collisions d'échange de métastabilité (dont à notre connaissance la section efficace n'a été ni mesurée ni calculée) et une thermalisation rapide du moment nucléaire par couplage spin-orbite dans les divers états rotationnels de la molécule serait à l'origine de la relaxation de la polarisation [Cou01].

Dans nos configurations expérimentales, le cas le plus marquant de relaxation en présence du laser pompe correspond à une augmentation de Γ_1 due au $\Gamma_{1\ laser}$ de près d'un facteur 5 par rapport au $\Gamma_{1\ dech}$ (en pompant sur la raie $f_{4\ m}$ à 32 mbar). En tenant compte des sections efficaces de création des molécules à partir d'atomes dans le niveau 2^3S_1 ou dans le niveau 2^3P [Zha93] et des populations des atomes dans les deux niveaux (dans cet exemple $n_P \sim 0.04n_m$ où n_m est la densité d'atomes métastables à M_{stat} et n_P la densité d'atomes portés dans le niveau excité 2^3P en présence du laser pompe et à M_{stat}), il vient que le taux de création des molécules augmente de près d'un facteur 4. Ce qui est tout à fait comparable aux mesures effectuées dans [Cou01] où des expériences de fluorescence induite par laser à 465 nm ont permis de mesurer une augmentation de la population des molécules métastables jusqu'à un facteur de l'ordre de 5 dans une cellule à 40 mbar et jusqu'à un facteur de l'ordre de 2.4 dans une cellule cylindrique à 32 mbar. Dans l'hypothèse où les molécules métastables sont responsables de l'augmentation de Γ_1 , la corrélation observée entre le taux de création des molécules et le taux de relaxation laisse entendre que $\Gamma_{1\ dech}$ est lui-même limité par les processus de formation des molécules métastables, au moins à cette pression.

Pour comprendre les effets des molécules métastables, nous considérons un modèle simple où la densité de molécules serait déterminée par leur taux de création *via* les processus à trois corps (impliquant deux atomes fondamentaux) et leur taux de destruction due à la diffusion vers les parois de la cellule (inversement proportionnel à la pression du gaz). Dans le cadre de ce modèle, la densité de molécules n_{mol} est proportionnelle à P^3 , où P est la pression du gaz.

Soit $\Gamma_1^{mol} = 1/T_1^{mol}$ le taux de dissipation de polarisation dans la molécule, $1/\tau_e^{mol}$ le taux d'échange entre une molécule métastable et un atome fondamental et M^{*mol} la polarisation de la molécule métastable. Suivant la valeur de T_1^{mol} (inconnue pour la molécule He_2^* , mais discutée dans [Abr61] pour la molécule H_2 et en champ magnétique faible) et la valeur de τ_e^{mol} (inconnue, mais raisonnablement du même ordre de grandeur que $1/\gamma_e$), deux régimes extrêmes sont à considérer :

i- le régime de **relaxation forte** dans lequel $\tau_e^{mol} \gg T_1^{mol}$. Dans ce régime, $M^{*mol} = 0$. Le taux de relaxation causé par les molécules serait proportionnel à leur densité; ce qui ramènerait un taux de relaxation due aux molécules proportionnel à P^3 et donc à N_g^3 (N_g étant la densité d'atomes dans le niveau fondamental).

ii- le régime de **relaxation faible** dans lequel $\tau_e^{mol} \ll T_1^{mol}$. Dans ce régime, $M^{*mol} = M$. Le taux de relaxation ramené dans le fondamental serait proportionnel à $\Gamma_1^{mol} n_{mol}/N_g$ avec une constante numérique de l'ordre de l'unité.

Comme montré dans la table 6.1, les données expérimentales semblent exclure une dépendance en N_g^2 du taux de relaxation $\Gamma_{1\ laser}$. Elles excluent davantage une dépendance en N_g^3 . Ce qui nous porte à éliminer le cas d'une relaxation forte. De plus, dans le régime de relaxation forte, on s'attendrait à des taux de relaxation $\Gamma_{1\ laser}$ indépendants de l'intensité du champ magnétique; ce qui est en contraste avec nos observations comme nous le montrons dans le paragraphe 6.3.4.

Dans la Fig.6.17, nous montrons que $n_m n_P/N_g$ est un paramètre pertinent pour $\Gamma_{1\ depo}$ et pas pour $\Gamma_{1\ laser}$. Il est à remarquer que $n_m n_P N_g$ semble réconcilier les valeurs de $\Gamma_{1\ laser}$ à toutes les pressions et raies de pompage considérées, comme illustré dans la Fig.6.18. À ce stade, nous ne sommes pas en mesure de proposer un mécanisme physique raisonnable donnant lieu à un taux de relaxation en $n_m n_P N_g$.

Comme montré dans [Abr61], le taux de relaxation nucléaire dans une molécule diatomique est inversement proportionnel à la pression du gaz. En régime de relaxation faible, ceci nous amène à attendre des taux de relaxation $\Gamma_{1\ laser}$ proportionnels au produit de densités $n_P N_g$ et non en fonction du produit $n_P N_g^2$.

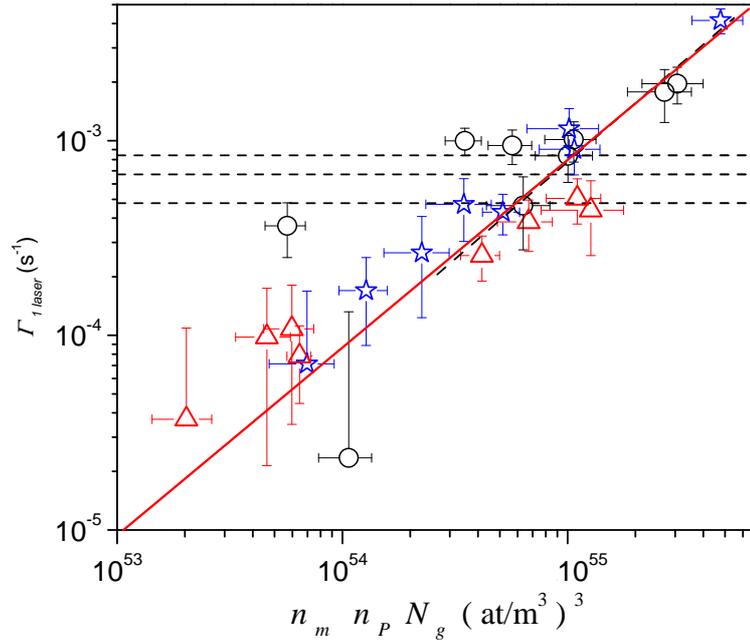


FIG. 6.18 – Variation de $\Gamma_{1\text{ laser}}$ en fonction du produit $n_m n_p N_g$, n_m étant la densité d’atomes métastables à M_{stat} , n_p la densité d’atomes portés dans le niveau excité 2^3P en présence du laser pompe et à M_{stat} et N_g la densité d’atomes dans le niveau fondamental. Les résultats sont relatifs aux trois pressions étudiées 8 mbar (triangles), 32 mbar (étoiles) et 67 mbar (cercles). Les traits horizontaux en pointillés correspondent aux $\Gamma_{1\text{ dech}}$ respectifs (croissant avec la pression). La droite, de pente $(7.79 \pm 0.42) \times 10^{-59} \text{ s}^{-1}/(\text{at}/\text{m}^3)^3$, représente un ajustement linéaire des données.

Nous voyons sur la Fig.6.19 que les résultats obtenus à 8 mbar et à 32 mbar sont

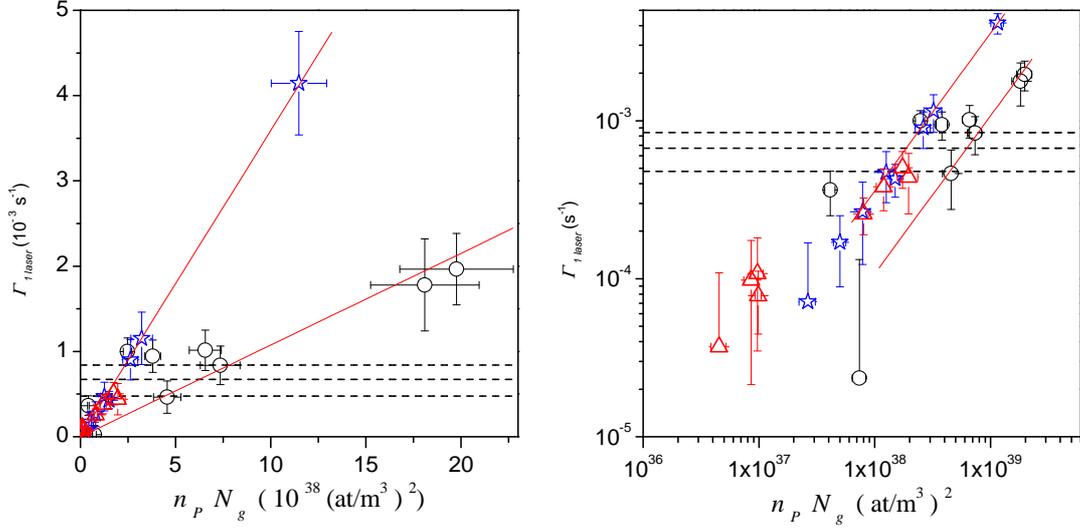


FIG. 6.19 – Variation de $\Gamma_1 laser$ en fonction du produit $n_P N_g$, n_P étant la densité d’atomes portés dans le niveau excité 2^3P en présence du laser pompe et à M_{stat} et N_g la densité d’atomes dans le niveau fondamental. Les résultats sont relatifs aux trois pressions étudiées 8 mbar (triangles), 32 mbar (étoiles) et 67 mbar (cercles). Les traits horizontaux en pointillés correspondent aux $\Gamma_1 dech$ respectifs (croissant avec la pression). Les pentes obtenues par ajustements linéaires sont respectivement $(3.59 \pm 0.04) \times 10^{-42} \text{ s}^{-1}/(\text{at}/\text{m}^3)^2$ à 32 mbar et $(1.07 \pm 0.02) \times 10^{-42} \text{ s}^{-1}/(\text{at}/\text{m}^3)^2$ à 67 mbar.

bien compatibles avec une telle dépendance mais que les valeurs de $\Gamma_1 laser$ sont trois fois plus faibles (à $n_P N_g$ donné) à 67 mbar. Dans le modèle simple considéré jusqu’ici, la densité n_{mol} croît comme P^3 ; il est clair que ce régime cesse d’être valable lorsque des processus non-linéaires viennent limiter n_{mol} (par exemple des collisions molécule-molécule ou molécule-atome 2^3S_1). Il est raisonnable de penser que de tels effets interviennent à 67 mbar, limitant n_m à être seulement $(67/32)^3 \times 1/3 \sim 3$ fois plus élevée qu’à 32 mbar (au lieu de $(67/32)^3 \sim 9$); ce qui expliquerait les résultats de la Fig.6.19.

La discussion précédente nous conduit à penser que des molécules en régime de relaxation faible sont responsables de la relaxation supplémentaire $\Gamma_1 laser$ observée dans nos expériences à pression élevée, et sans doute également d’une part importante dans la relaxation due à la décharge $\Gamma_1 dech$.

Il est clair qu’une confirmation directe au moyen d’une mesure *in-situ* de la densité de molécules est nécessaire pour valider notre description. La mesure de cette densité permettrait en outre de déduire la valeur du temps de relaxation T_1^{mol} et

de quantifier l'effet sur ce temps du découplage hyperfin produit par le champ de 1.5 Tesla.

6.3.4 Effets du champ magnétique sur la relaxation

Revenons à la Fig.6.15. Les écarts entre les valeurs des polarisations stationnaires mesurées et celles calculées en considérant comme seul processus de relaxation de la polarisation la contribution de la décharge sont également observés lors des expériences de pompage optique en faible champ magnétique comme illustré dans la Fig.6.20.

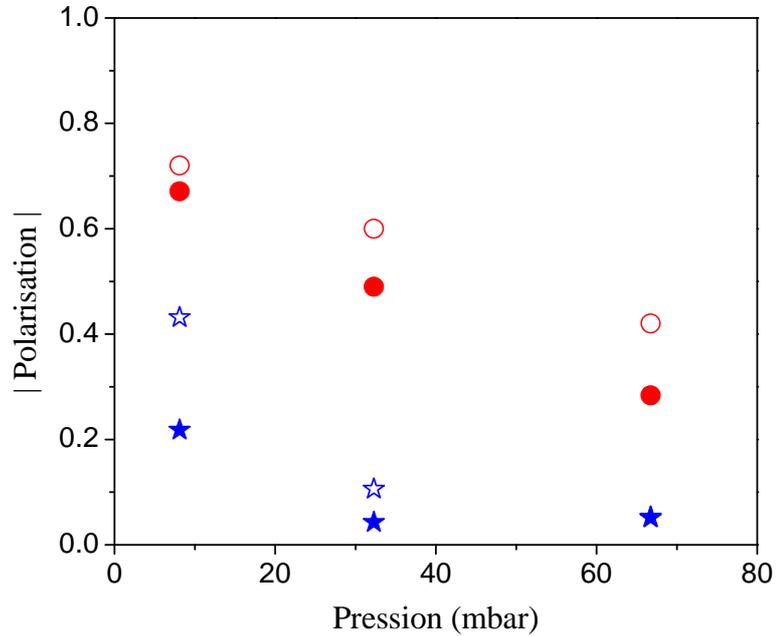


FIG. 6.20 – Polarisation stationnaires obtenues par pompage optique en champ magnétique de l'ordre du mTesla (étoiles, voir paragraphe 7.1) et à 1.5 Tesla (cercles) en fonction de la pression d'hélium-3. Les étoiles correspondent aux résultats de pompage sur la raie C_9 . Les cercles correspondent aux résultats de pompage sur la raie f_{2m} . Les symboles pleins et creux correspondent respectivement aux valeurs mesurées et celles calculées en considérant comme processus de relaxation la seule contribution de la décharge. La puissance laser incidente sur la cellule est 250 mW.

Dans ce paragraphe, nous nous proposons de comparer et discuter les taux de relaxation de la polarisation en présence ($\Gamma_{1\ dech}$ et $\Gamma_{1\ laser}$) et en absence ($\Gamma_{1\ dech}$) de laser pompe à 1.5 Tesla à ceux obtenus en faible champ magnétique.

Nous considérons pour cela la variation de $\Gamma_{1\ laser}$ en fonction de la densité d'atomes dans le niveau excité 2^3P (n_P) à pression élevée. À titre d'exemple, les résultats obtenus dans la cellule à 32 mbar sont illustrés dans la Fig.6.21. Nous

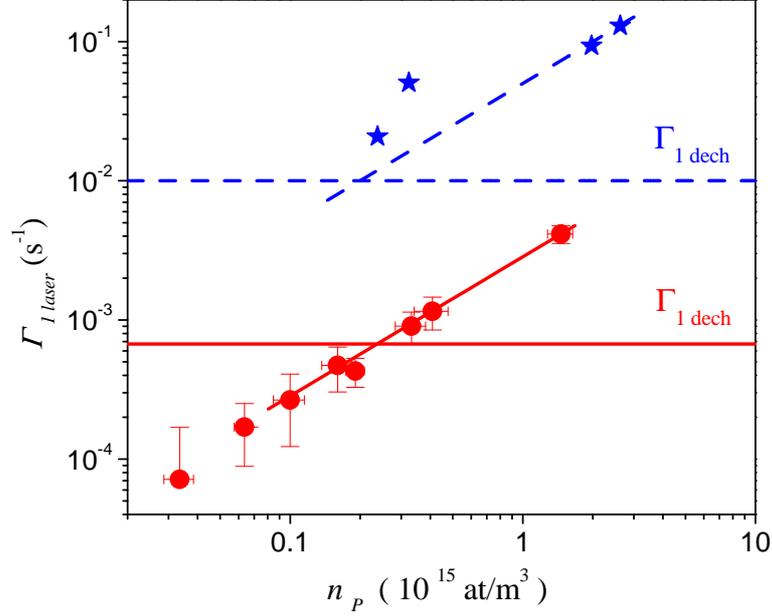


FIG. 6.21 – Variation de $\Gamma_{1\ laser}$ en fonction de n_P , la densité d'atomes portés dans le niveau excité 2^3P en présence du laser pompe et à M_{stat} dans la cellule à 32 mbar. Les étoiles et cercles correspondent respectivement aux résultats de pompage en champ magnétique de l'ordre du mTesla (voir paragraphe 7.1) et à 1.5 Tesla. Les traits horizontaux correspondent aux $\Gamma_{1\ dech}$. Les droites en pointillés correspondent aux ajustements linéaires des résultats expérimentaux.

y indiquons également en traits horizontaux les valeurs des $\Gamma_{1\ dech}$. En faible champ magnétique, comme à 1.5 Tesla, nous observons une augmentation des $\Gamma_{1\ laser}$ avec n_P . Toutefois, la relaxation aussi bien en présence qu'en absence de laser pompe est nettement moins importante à 1.5 Tesla qu'en faible champ magnétique, probablement grâce à un efficace découplage hyperfin des espèces excitées qui contribuent à la relaxation.

La réduction du taux de relaxation en présence de la décharge $\Gamma_{1\ dech}$ de près d'un facteur 10 permet de comprendre en grande partie le gain de polarisation observé à forte pression (comparer à pression donnée les étoiles et les cercles pleins dans la Fig.6.20). En effet, si lors des expériences de pompage optique en faible champ magnétique des plasmas comparables à ceux expérimentalement entretenus à 1.5 Tesla peuvent être obtenus, des polarisations nucléaires beaucoup plus grandes que celles mesurées pourraient alors être obtenues en pompant sur la raie

C_9 comme illustré dans la Fig.6.22.

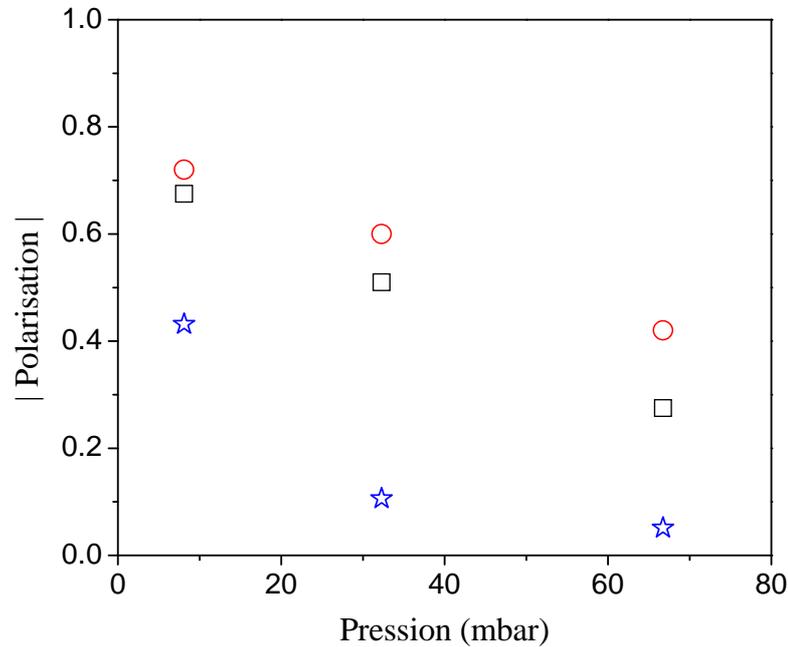


FIG. 6.22 – Polarisation stationnaires obtenues par pompage optique en champ magnétique de l'ordre du mTesla (étoiles, voir paragraphe 7.1) et à 1.5 Tesla (cercles) en fonction de la pression d'hélium-3. Les étoiles correspondent aux résultats de pompage sur la raie C_9 . Les cercles correspondent aux résultats de pompage sur la raie f_{2m} . Les carrés correspondent à une situation hybride où le pompage optique est effectué en faible champ magnétique (sur C_9) dont les paramètres (n_m , $T_{1\ dech}$) sont ceux des plasmas entretenus à 1.5 Tesla. La puissance laser incidente sur la cellule est 250 mW.

L'étude de la dépendance en pression de $\Gamma_{1\ laser}$ semble indiquer que ce sont probablement des molécules métastables qui sont la cause principale de la relaxation observée. Dans cette hypothèse, la réduction de la relaxation à 1.5 Tesla fournit une information précieuse sur l'effet du découplage hyperfin dans ces molécules. Toutefois, d'autres mesures expérimentales sont nécessaires pour valider cette hypothèse et une étude des $\Gamma_{1\ laser}$ en fonction du champ magnétique est actuellement en cours (paragraphe 7.3).

Chapitre 7

Expériences complémentaires

Dans ce chapitre, nous décrivons un ensemble d'expériences complémentaires de pompage optique réalisées à différentes valeurs du champ magnétique dans les cellules cylindriques de dimensions 5 cm×5 cm.

Nous commençons par décrire des expériences de pompage optique effectuées dans un champ magnétique de l'ordre du mTesla. Les résultats obtenus sont utilisés pour comparer les performances du pompage optique en faible champ magnétique et à 1.5 Tesla en fonction de la pression.

Ensuite, nous présentons les résultats de quelques tentatives de pompage optique dans le champ magnétique de frange de l'imageur clinique. En positionnant le montage optique construit pour notre étude à 1.5 Tesla le long de l'axe horizontal de l'imageur à diverses distances par rapport au centre de l'imageur, nous avons accès à des champs magnétiques allant de 1.3 Tesla à 0.4 Tesla. Des études à 0.1 Tesla ont été entreprises précédemment en utilisant un autre dispositif. Des résultats sont reportés dans la table 1.1 et dans les références [Nac02], [Cou01].

Finalement, nous décrivons la mise en place d'un dispositif amagnétique plus compact que celui utilisé à 1.5 Tesla. Ce nouveau montage sert à des expériences de pompage optique dans un champ magnétique homogène et pouvant aller jusqu'à 2 Tesla. Nous présentons les principales améliorations de ce dispositif par rapport à celui fabriqué pour notre étude à 1.5 Tesla.

7.1 Expériences en faible champ magnétique

Nous présentons dans ce paragraphe des mesures de pompage effectuées dans les cellules cylindriques de dimensions 5 cm×5 cm en faible champ magnétique. Les résultats obtenus sont utilisés pour comparer les performances du pompage optique en faible champ magnétique et à 1.5 Tesla en fonction de la pression.

7.1.1 Montage expérimental

Le schéma du montage expérimental est illustré dans la Fig.7.1. Le laser pompe utilisé est un laser délivrant une puissance maximale de 5 W [Tas04]. Nous avons effectué des mesures de pompage en utilisant des puissances incidentes de 250 mW et de 2 W. Le faisceau pompe est réglé de façon à éclairer toute la cellule de pompage optique, et il se propage parallèlement au champ magnétique statique. De polarisation circulaire σ^- , il est utilisé pour interagir avec les atomes et créer une orientation nucléaire dans l'échantillon d'hélium-3. Le faisceau pompe, peu absorbé après avoir traversé la cellule contenant le gaz à polariser, est renvoyé sur lui-même par un miroir pour améliorer l'efficacité du pompage. Le champ magnétique est créé par un ensemble de bobines installés dans notre laboratoire et décrit dans [Bid03].

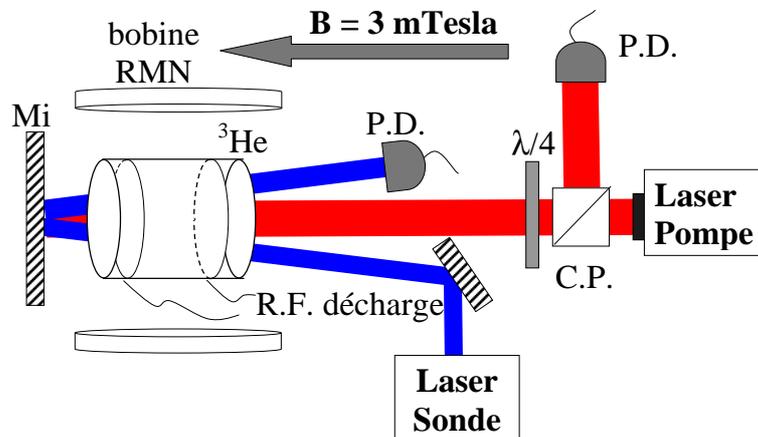


FIG. 7.1 – Schéma du montage expérimental du pompage optique en faible champ magnétique. Le faisceau pompe polarisé circulairement se propage parallèlement au champ magnétique statique de l'imageur clinique. C.P. et $\lambda/4$ sont un cube polariseur et une lame retardatrice quart d'onde utilisée pour ajuster la polarisation du faisceau laser ; Mi est un miroir ; R.F.décharge est la décharge radiofréquence entretenue par une paire d'électrodes extérieures à la cellule ; P.D. sont des photodiodes pour l'infrarouge. Des bobines RMN calibrées sont utilisées pour mesurer la polarisation nucléaire.

Pour mesurer la polarisation nucléaire, nous disposons de deux méthodes. La première, optique, consiste à suivre la population d'un sous-niveau métastable (paragraphe 4.3.1) à partir d'une mesure d'absorption d'un faisceau sonde polarisé circulairement (Fig.4.6). La deuxième méthode est la résonance magnétique nucléaire RMN entre les sous-niveaux de l'état fondamental [Lor93]. Aux basses pressions, et vu la faible densité des atomes dans l'échantillon, nous avons eu re-

cours à la méthode de mesure optique. Aux pressions plus élevées, nous utilisons une paire de bobines RMN inductrices pour basculer l'aimantation d'un certain angle grâce à des impulsions de champ radiofréquence résonnant avec le moment magnétique nucléaire de l'hélium-3. Une autre paire de bobines, placée aussi au voisinage de la cellule, est utilisée pour détecter le signal de précession libre de l'aimantation transverse ainsi créée. Un moyen commode et classique pour disposer de signaux électriques importants consiste à utiliser un circuit de détection résonnant (condensateur placé en parallèle avec les bobines de détection) permettant d'accorder le circuit à la fréquence de Larmor des spins. Notre circuit avait un facteur de qualité Q de l'ordre de 40. Le dispositif RMN est calibré en se servant de la technique de mesure par fluorescence à $\lambda = 667.8$ nm [Big92] dans la cellule à 1.33 mbar (0.12 mV RMS, impulsion $\pi/2$, $M = 1$, 1.33 mbar).

7.1.2 Résultats expérimentaux

Comme le but de cette série d'expériences est d'établir les résultats du pompage optique en faible champ magnétique dans les mêmes cellules cylindriques que nous avons étudiées à 1.5 Tesla, nous n'avons pas procédé à une étude systématique en fonction des paramètres expérimentaux. Pour les trois pressions élevées (8 mbar, 32 mbar et 67 mbar), nous nous sommes placés dans le contexte d'une décharge favorable au pompage, une décharge la plus douce possible. Puis nous avons procédé au pompage sur la raie C_9 en utilisant une puissance laser incidente de 250 mW ou une puissance laser incidente de 2 W ; les résultats respectifs sont reportés dans la Fig.7.2 et la Fig.7.3. Nous y représentons en fonction de l'intensité de la décharge caractérisée par le temps de relaxation longitudinale de la polarisation $T_{1\ dech}$ les polarisations stationnaires obtenues et le temps de construction de la polarisation. Les densités d'atomes métastables calculées à partir de mesures d'absorption du faisceau sonde à $M = 0$ sont :

à 67 mbar, 1.25×10^{16} at/m³ pour $T_{1\ dech} = 204$ s ;

à 32 mbar, 2.92×10^{16} at/m³ pour $T_{1\ dech} = 64$ s et 2.23×10^{16} at/m³ pour $T_{1\ dech} = 89$ s ;

à 8 mbar, $(4.13 \pm 0.19) \times 10^{16}$ at/m³ pour $T_{1\ dech} = 113$ s, $(2.22 \pm 0.17) \times 10^{16}$ at/m³ pour $T_{1\ dech} = 313$ s et $(1.82 \pm 0.02) \times 10^{16}$ at/m³ pour $T_{1\ dech} = 448$ s.

Des polarisations de l'ordre de 0.33 à 8 mbar, 0.11 à 32 mbar et 0.07 à 67 mbar sont obtenues. En augmentant la puissance laser de près d'un facteur 8, aucune augmentation en polarisation stationnaire n'est obtenue alors que les temps de construction se raccourcissent notablement jusqu'à près d'un facteur 4.

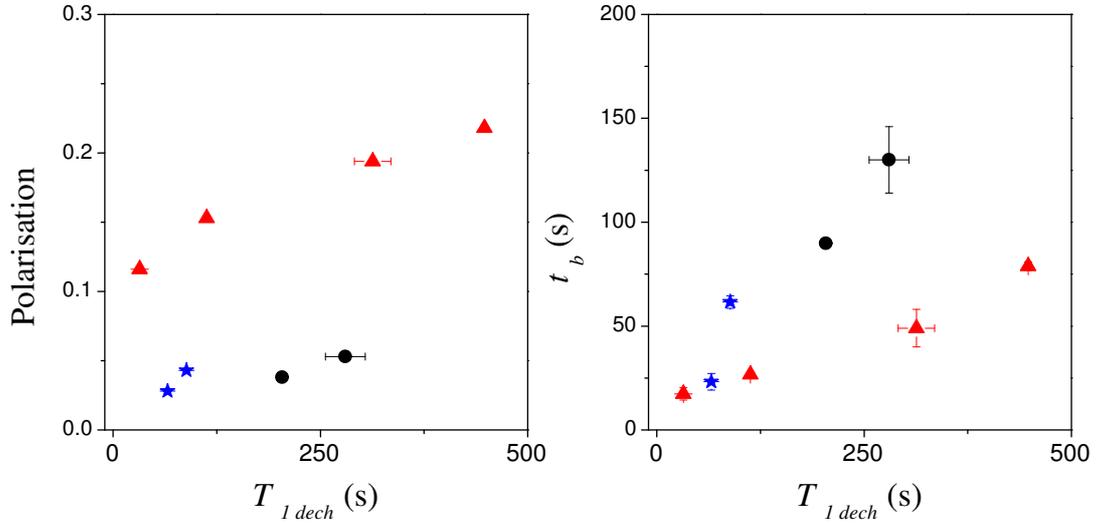


FIG. 7.2 – Résultats du pompage optique sur la raie C_9 en fonction de l'intensité de la décharge caractérisée par le temps de relaxation longitudinale de la polarisation $T_{1\ dech}$. La puissance incidente du laser pompe est 250 mW. Les triangles correspondent à la cellule de 8 mbar, les étoiles à 32 mbar et les cercles à 67 mbar. Une paire d'électrodes posées au contact des fenêtres optiques de la cellule est utilisée pour entretenir la décharge. Les densités de métastables n_m respectives sont résumées dans le texte.

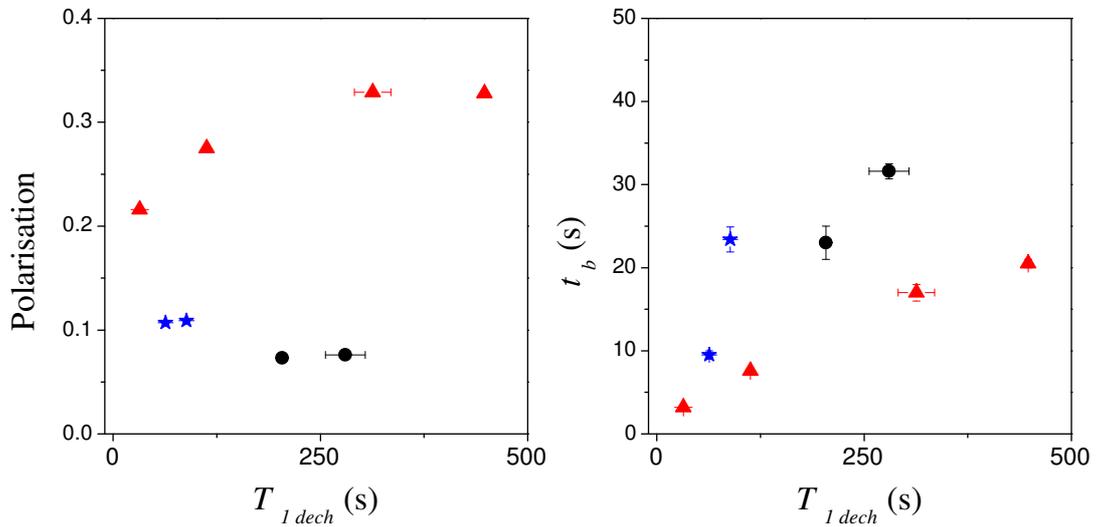


FIG. 7.3 – Même légende que la Fig.7.2. La puissance incidente du laser pompe est 2 W.

7.2 Expériences sur l'axe de l'imageur clinique

7.2.1 Considérations expérimentales

Dans ce paragraphe, nous présentons des résultats de pompage optique pour des champs magnétiques inférieurs à 1.5 Tesla. Nous utilisons pour cette étude le même montage optique mis en place pour l'étude effectuée à 1.5 Tesla. Nous positionnons le dispositif amagnétique sur le lit de l'imageur, à diverses distances par rapport au centre de l'imageur. Nous avons ainsi accès à des champs magnétiques B allant de 1.3 Tesla à 0.4 Tesla (voir carte du champ Fig.3.2). Le laser pompe utilisé est la diode laser amplifiée délivrant une puissance totale de 500 mW.

Le spectre d'absorption de l'hélium-3 à diverses valeurs du champ magnétique est représenté dans la Fig.7.4. Dans notre étude préliminaire, nous n'avons pas procédé à une comparaison systématique de l'efficacité du pompage optique en fonction des raies atomiques à toutes les valeurs du champ magnétique. Comme le pompage sur la raie f_{4m} à 1.5 Tesla mène à des polarisations élevées, nous avons "suivi" cette raie aux différents champs magnétiques. Sur la Fig.7.4, la raie essayée est indiquée par une flèche. En faible champ magnétique, cette raie correspond à C_3-C_5 . Pour mesurer la polarisation nucléaire, nous avons également utilisé la méthode de mesure par absorption du faisceau sonde (chapitre 4).

7.2.2 Résultats préliminaires en fonction du champ

Nous commençons par une brève description des configurations expérimentales retenues à chaque valeur du champ magnétique en détaillant la composition spectrale des raies pompe et sonde utilisées. Ensuite, nous présentons et discutons les résultats préliminaires du pompage optique obtenus à faible et forte pressions.

Brève description des raies atomiques en fonction du champ

À 1.5 Tesla, le pompage multi-transitions sur la raie f_{4m} excite à la fois quatre transitions atomiques. En diminuant le champ magnétique, la composition de la raie f_{4m} et ses caractéristiques spectrales changent progressivement. Dans notre étude en fonction de l'intensité du champ magnétique, le pompage est effectué sur cette raie. Nous reportons dans la table 7.1 la composition spectrale de cette raie de pompage multi-transition et celles du doublet de détection excité par le laser sonde pour trois valeurs du champ magnétique. À 0.45 Tesla, l'allure du spectre d'absorption σ^- de l'hélium-3 est complètement différente de son allure à 1.5 Tesla; elle ressemble plus à celle du spectre d'absorption en très faible champ magnétique. À cette valeur du champ magnétique, une autre raie pompe a été considérée; il s'agit de la transition A_6-B_{18} à 22.90 GHz. Le doublet de sonde σ^+ correspondant

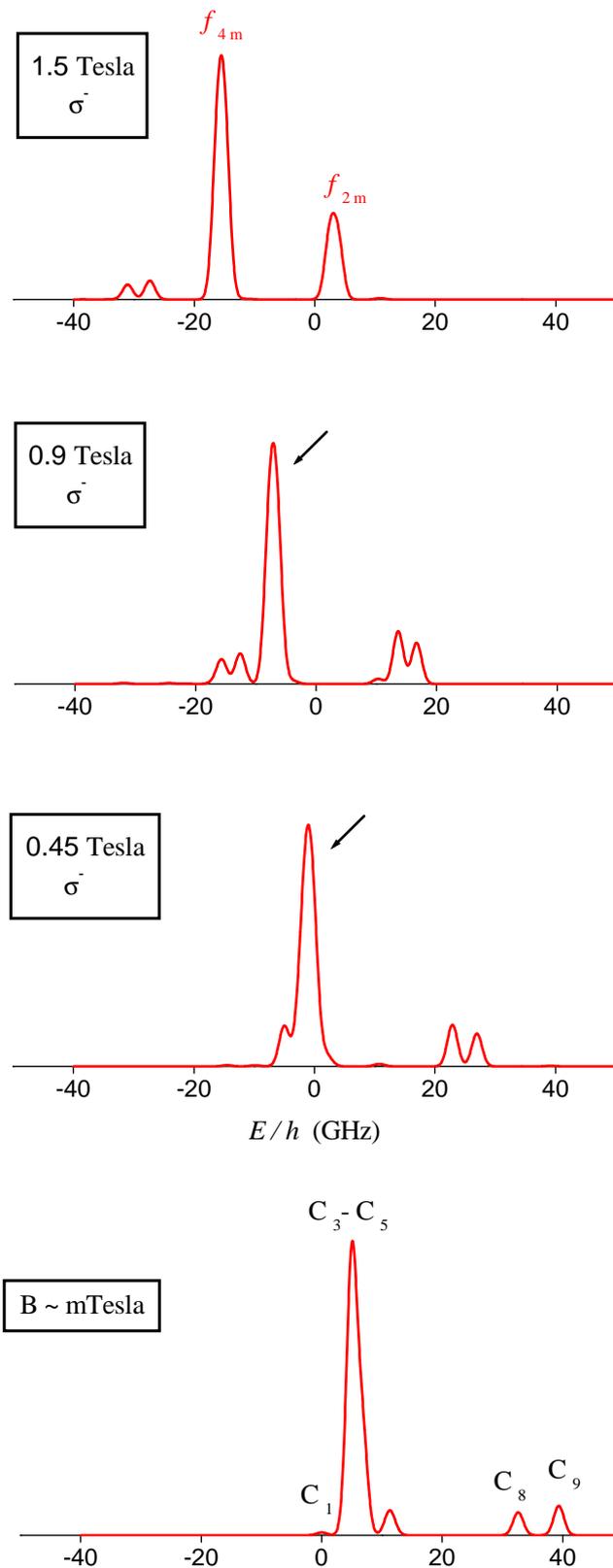


FIG. 7.4 – Spectres d'absorption de l'hélium-3 correspondant à une lumière polarisée σ^- et à différentes valeurs du champ magnétique. Nous indiquons par une flèche la raie atomique utilisée pour le pompage optique aux champs magnétiques intermédiaires entre 1.5 Tesla et quelques mTesla.

TAB. 7.1 – Compositions spectrales de la raie de pompage multi-transition indiquée par une flèche sur les spectres de la Fig.7.4 et du doublet de détection excité par le laser sonde pour trois valeurs du champ magnétique : $B = 1.3$ Tesla, 0.9 Tesla et 0.45 Tesla.

1.3 Tesla (σ^-)				0.9 Tesla (σ^-)			
A_i	B_j	E_{ij}/h (GHz)	T_{ij}	A_i	B_j	E_{ij}/h (GHz)	T_{ij}
A_3	B_5	-12.49	0.983	A_3	B_5	-6.43	0.959
A_4	B_6	-12.59	0.997	A_4	B_6	-6.57	0.994
A_1	B_1	-13.65	1.000	A_1	B_1	-7.63	1.000
A_2	B_2	-13.80	0.999	A_2	B_2	-7.77	0.999
A_5	B_9	-23.06	0.276	A_5	B_9	-12.59	0.388
A_6	B_{10}	-26.61	0.218	A_6	B_{10}	-15.69	0.314

0.45 Tesla (σ^-)			
A_i	B_j	E_{ij}/h (GHz)	T_{ij}
A_5	B_{17}	26.95	0.419
A_6	B_{18}	22.90	0.532
A_3	B_5	-0.13	0.813
A_4	B_6	-0.39	0.985
A_1	B_1	-1.41	1.000
A_2	B_2	-1.47	0.993

comporte les transitions A_1-B_{18} à 53.54 GHz et A_2-B_{17} à 48.85 GHz.

Aux faibles pressions

Pour ces expériences, le plasma est entretenu dans la cellule de 1.33 mbar grâce à une paire d'électrodes circulaires enroulées autour de la cellule. L'intensité de la décharge est choisie la plus faible possible et nous avons un $T_{1\ dech}$ de l'ordre de 650 s à tous les champs magnétiques. La puissance laser pompe incidente au niveau de la cellule est de l'ordre de 500 mW et le faisceau éclaire toute la cellule. Les résultats du pompage en termes de polarisation stationnaire obtenue et temps de construction de la polarisation sont reportés en fonction de l'intensité du champ magnétique dans la Fig.7.5. Les carrés représentent les résultats obtenus en pompant sur la raie comportant quatre transitions atomiques. L'étoile représente un résultat de pompage à 0.45 Tesla sur la raie A_6-B_{18} à 22.90 GHz.

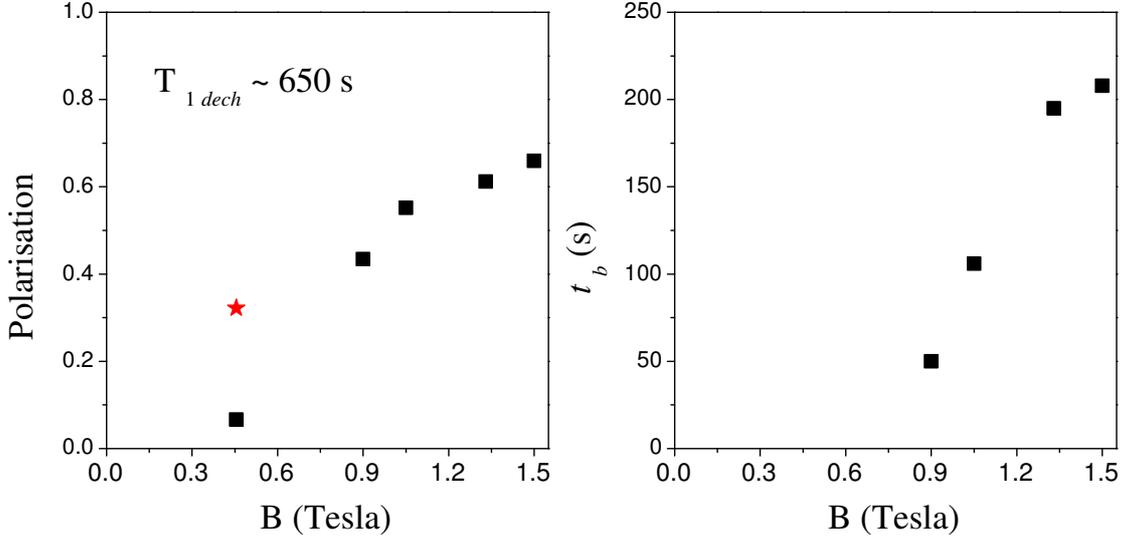


FIG. 7.5 – Résultats expérimentaux préliminaires du pompage optique à 1.33 mbar en fonction du champ magnétique. Le laser pompe utilisé est la diode laser amplifiée délivrant une puissance de 500 mW (paragraphe 3.4.2). L'intensité de la décharge est choisie de façon à avoir un $T_{1\ dech}$ de l'ordre de 650 s à tous les champs magnétiques. Les carrés et étoiles correspondent au pompage sur des raies différentes (voir texte).

Au fur et à mesure que le champ magnétique diminue, les polarisations stationnaires atteintes par pompage multi-transitions diminuent progressivement. À 0.45 Tesla, les performances obtenues ressemblent aux résultats de pompage sur les raies C_3 - C_5 en faible champ magnétique [Nac85b]. La diminution de la polarisation est due à la compétition entre les diverses transitions composant la raie. Simultanément le temps de construction de la polarisation se raccourcit. Toutefois, le taux de production de la polarisation, inversement proportionnel à t_b , (Eq.4.16) augmente en diminuant le champ magnétique. Ceci peut s'expliquer par l'augmentation des angles de mélange θ_{\pm} (voir la structure atomique de l'hélium-3 en fonction du champ magnétique, paragraphe 2.1.1) et rejoint les prédictions qualitatives de notre modèle à 6 populations. Par ailleurs, le pompage sur la transition A_6 - B_{18} à 22.90 GHz donne une polarisation stationnaire de l'ordre de 0.35 (étoile Fig.7.5), inférieure aux polarisations habituellement obtenues à 3 mTesla en pompant sur les raies C_8 ou C_9 . Ceci est probablement dû aux inhomogénéités magnétiques qui limitent l'efficacité du pompage optique (voir paragraphe 2.2.3 et résultats obtenus aux fortes pressions).

Aux fortes pressions

Notre étude de pompage optique en fonction du champ magnétique a comporté des mesures effectuées dans la cellule cylindrique à 32 mbar. Nous avons effectué ces mesures avant l'étude systématique à 1.5 Tesla. Pour entretenir le plasma, nous avons utilisé une paire de petites électrodes que nous avons posées au contact des fenêtres optiques de la cellule. Cette configuration permet d'entretenir des plasmas favorables au pompage optique même si quatre électrodes connectées deux à deux permettent d'améliorer les résultats du pompage (paragraphe 5.2.2). Nous avons procédé au pompage optique en excitant à chaque valeur du champ magnétique la raie à quatre transitions décrite précédemment. Les polarisations stationnaires obtenues sont reportées dans la Fig.7.6.

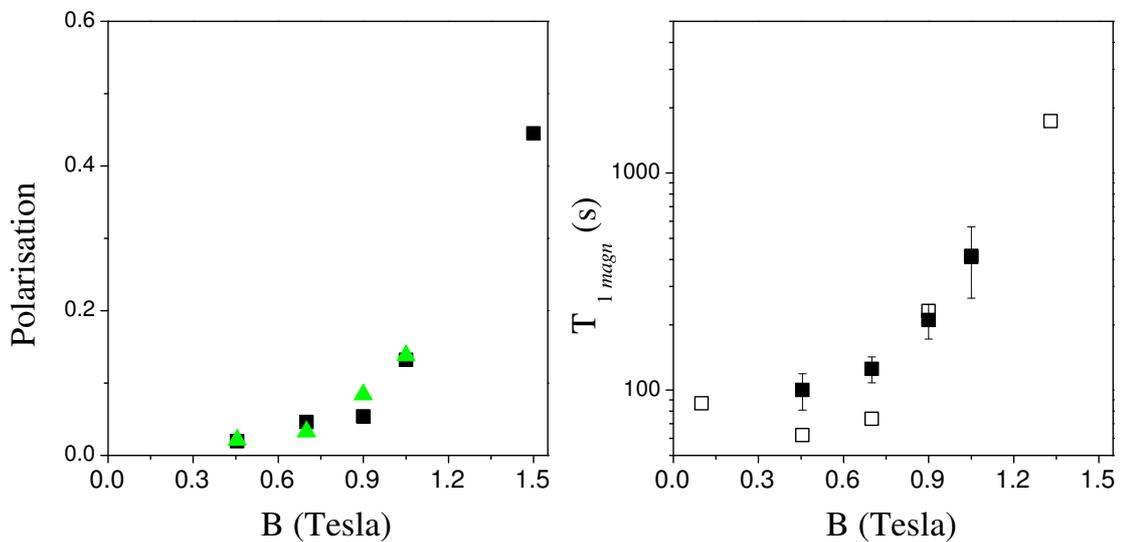


FIG. 7.6 – À gauche, polarisations stationnaires obtenues à 32 mbar par pompage optique à diverses valeurs du champ magnétique. Le laser pompe utilisé est la diode laser amplifiée délivrant une puissance de 500 mW (paragraphe 3.4.2). Les carrés et les triangles correspondent à deux essais de pompage optique. - À droite, valeurs expérimentales (carrés pleins) et théoriques (carrés creux) de $T_{1\ magn}$ obtenues dans la cellule à 32 mbar en fonction du champ magnétique.

Nous observons que les polarisations atteintes diminuent au fur et à mesure que le champ magnétique diminue de 1.5 Tesla à 0.45 Tesla. Deux essais de pompage optique ont été menés à chaque valeur du champ dans le but de tester la reproductibilité des résultats du pompage. À chaque essai, nous avons réglé l'intensité de la décharge de façon à avoir une décharge la plus douce possible. Les résultats (Fig.7.6 à gauche) marquent une décroissance brutale de la polarisation hors de la zone centrale de l'imageur à 1.5 Tesla ; les valeurs de polarisation sont

de l'ordre de 0.1, inférieures aux polarisations stationnaires obtenues à 3 mTesla (paragraphe 7.1). Ce résultat paradoxal, encore plus spectaculaire qu'à 1.33 mbar résulte sans doute de la relaxation de la polarisation due aux inhomogénéités du champ magnétique.

Nous avons procédé à une mesure expérimentale des $T_1 \text{ magn}$ à quelques valeurs du champ magnétique par la même méthode optique décrite dans le chapitre 4. Nous commençons par polariser le gaz puis nous éteignons la décharge pendant un certain temps et la rallumons brièvement pour mesurer la polarisation. La procédure est répétée plusieurs fois. Ensuite, nous ajustons la décroissance de la polarisation par une exponentielle et nous en déduisons la valeur de $T_1 \text{ magn}$. Les résultats des mesures expérimentales sont reportés dans la Fig.7.6 (graphe à droite). Par ailleurs, comme nous disposons de la carte du champ magnétique le long de l'axe de l'imageur et en supposant une symétrie cylindrique, nous avons dérivé les gradients magnétiques le long de l'axe de l'imageur et les inhomogénéités relatives du champ (de l'ordre de 8×10^{-2} à 1 Tesla). Nous calculons ensuite les valeurs numériques de $T_1 \text{ magn}$ en nous servant de la formule de l'Eq.2.52 adaptée aux cellules cylindriques $5 \text{ cm} \times 5 \text{ cm}$ et dans la limite de champ magnétique intense $\gamma_0 B_0 \tau_{11} \gg 1$:

$$T_1 \text{ magn} = 2.02 \left(\frac{4B_0}{\Delta B} \right)^2 \tau_{11} (1 + (\gamma_0 B_0 \tau_c)^2) \quad (7.1)$$

Les résultats numériques sont également reportés dans la Fig.7.6 (symboles creux). Les écarts observés entre les valeurs expérimentales et numériques de $T_1 \text{ magn}$ peuvent être attribués aux difficultés liées à la méthode de mesure expérimentale (pertes engendrées à chaque fois que la décharge est éteinte et rallumée) si la valeur expérimentale de $T_1 \text{ magn}$ est inférieure à sa valeur numérique et à une évaluation approximative des inhomogénéités relatives du champ magnétique. Même si nous n'obtenons pas un accord parfait entre les résultats expérimentaux et numériques, nous déduisons que nos essais de pompage à 32 mbar étaient limités par les inhomogénéités du champ magnétique le long de l'axe de l'imageur. Les $T_1 \text{ magn}$ sont dans ces conditions trop courts pour permettre un pompage efficace.

Nous illustrons dans la Fig.7.7 des résultats numériques de $T_1 \text{ magn}$ (Eq.7.1) en fonction de la pression. Les deux graphes correspondent à deux valeurs du champ magnétique 0.5 Tesla (à gauche) et 1 Tesla (à droite) et les différentes courbes correspondent à des valeurs différentes d'homogénéité relative du champ magnétique. L'étude de la caractérisation de l'efficacité du pompage optique aux pressions élevées en fonction de l'intensité du champ magnétique nécessite un champ magnétique variable et présentant des inhomogénéités inférieures à 2×10^{-2} .

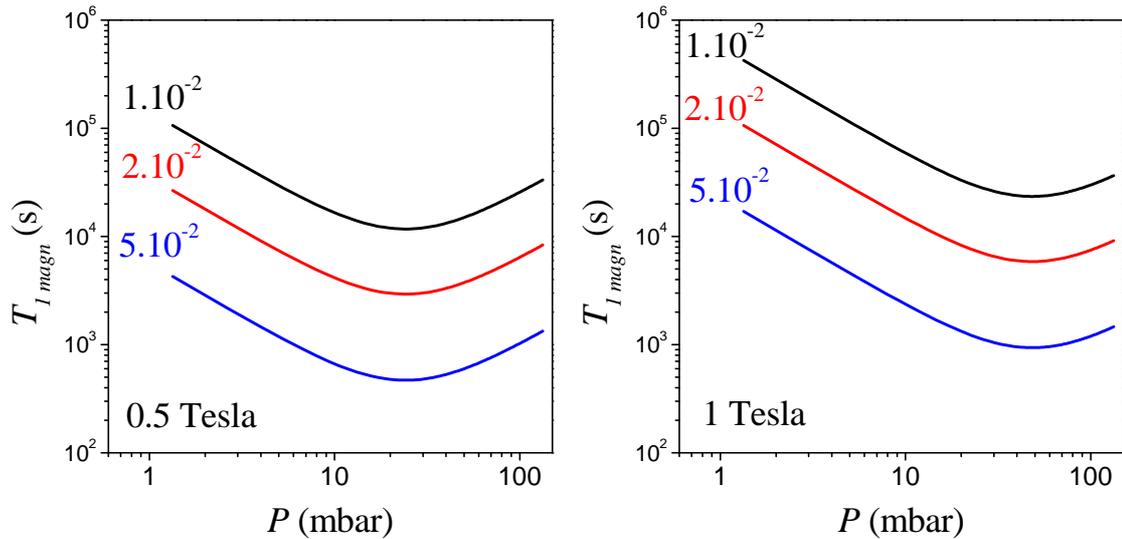


FIG. 7.7 – Valeurs numériques de $T_{1\text{ magn}}$ en fonction de la pression du gaz. Les deux graphes correspondent à deux valeurs du champ magnétique 0.5 Tesla (à gauche) et 1 Tesla (à droite). Les différentes courbes correspondent à des valeurs différentes d’homogénéité relative du champ magnétique

7.3 Expériences jusqu’à 2 Tesla

L’étude de l’efficacité du pompage optique aux pressions élevées et à différentes valeurs du champ magnétique est actuellement poursuivie en collaboration avec le groupe du Pr. T. Dohnalik à l’Université Jagellone à Cracovie.

7.3.1 Montage expérimental

Le groupe de Cracovie dispose d’un aimant supraconducteur dont le champ magnétique peut être varié de 0 à 2 Tesla avec une très bonne homogénéité (de l’ordre de quelques ppm sur le volume des cellules cylindriques). Le tunnel de l’aimant a un diamètre de 0.3 m et une profondeur de 0.5 m (voir photo Fig.7.8).

Pour ces études en champ magnétique variable, nous avons construit un nouveau dispositif amagnétique plus compact que le précédent (Fig.7.9). Plusieurs améliorations du montage optique par rapport au dispositif expérimental utilisé à 1.5 Tesla ont été mises en place. Nous avons aligné les faisceaux des lasers pompe et sonde parallèlement au champ magnétique statique de l’aimant. De cette façon, les deux lasers interagissent avec les mêmes atomes. En pratique, le faisceau sonde n’est pas parfaitement aligné avec la direction du champ magnétique mais fait un angle de l’ordre de 10° avec \mathbf{B} . L’étude systématique du pompage optique sera effectuée dans les mêmes cellules cylindriques de dimensions internes $4.6 \text{ cm} \times 4.6 \text{ cm}$.



FIG. 7.8 – Photo de l'aimant supraconducteur implanté à l'Université Jagellone à Cracovie. L'aimant produit un champ magnétique \mathbf{B} homogène pouvant être varié de quelques mTesla à 2 Tesla. Le tunnel de l'aimant a un diamètre de 0.3 m et une profondeur de 0.5 m.

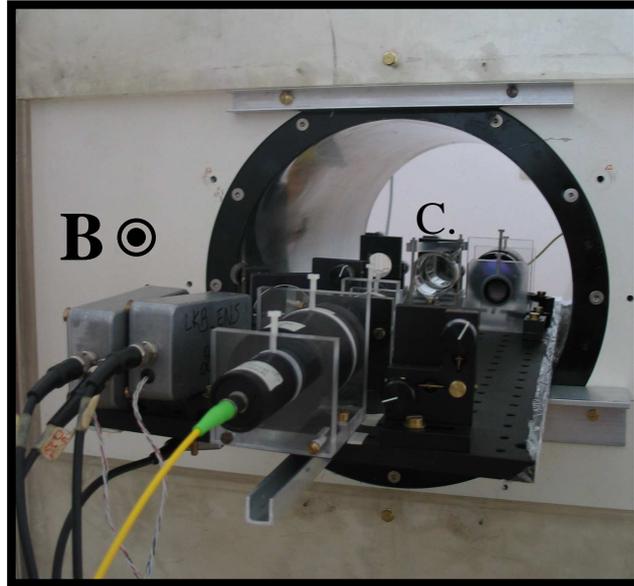


FIG. 7.9 – Vue de face du dispositif expérimental amagnétique monté dans le tunnel de l'aimant de façon que la cellule scellée d'hélium-3 (C.) soit au centre du tunnel. **B** est le champ magnétique statique de l'aimant supraconducteur, perpendiculaire au plan de la figure.

Un autre ensemble de cellules cylindriques avec des pressions comparables sera également considéré. Ces cellules sont plus longues mais de diamètre plus petit ; leurs dimensions internes sont $10\text{ cm} \times 1.5\text{ cm}$. Le laser pompe utilisé est la diode laser amplifiée délivrant une puissance totale de 500 mW. Le faisceau pompe en sortie de la fibre optique est collimaté puis sa taille est réduite à l'aide d'un diaphragme circulaire de diamètre 2 cm de façon à avoir une intensité laser quasi-uniforme incidente à la cellule. La polarisation nucléaire est mesurée en se servant de l'absorption du faisceau sonde comme décrit dans le chapitre 4.

7.3.2 Premiers résultats

L'expérience de pompage optique en champ variable est montée à Cracovie depuis fin 2004. Nous avons effectué avec l'équipe de T. Dohnalik les premières mesures de pompage optique en faible champ magnétique sur la raie C_9 , l'aimant supraconducteur n'étant pas encore refroidi.

Début 2005, l'aimant a été mis en route à 1.5 Tesla. Les premières mesures que nous avons effectuées sont assez encourageantes et les résultats obtenus s'inscrivent dans la continuité des résultats décrits dans le chapitre 5. Quelques unes de ces mesures nous ont servi pour la comparaison des résultats expérimentaux

et numériques du pompage optique à 1.5 Tesla. Les résultats sont reportés dans le chapitre 6. Il s'agit des expériences où nous étudions l'influence du désaccord de la fréquence du laser pompe par rapport au centre d'une raie de pompage multi-transitions (paragraphe 6.2.3). Par ailleurs, comme le montage optique mis en place pour les expériences de Cracovie permet de pomper et sonder les mêmes atomes, il est possible de caractériser grâce à des mesures expérimentales la dépendance de la densité de métastables vis à vis de l'orientation électronique dans le niveau métastable $\langle J_z^* \rangle$ (résultats présentés dans le paragraphe 6.1.3).

Conclusion

Dans ce mémoire, nous avons décrit les résultats d'une étude expérimentale systématique, accompagnée d'une modélisation théorique réaliste du pompage optique dans des conditions nouvelles de champ magnétique intense et de forte pression.

Nous avons effectué des mesures de cinétique de pompage et de polarisation dans des cellules scellées, contenant de l'hélium-3 à différentes pressions. Nous avons exploré l'efficacité du pompage optique à 1.5 Tesla et avons déterminé les conditions favorables au pompage optique.

Nous avons ainsi montré qu'un champ magnétique suffisamment intense permet de polariser l'hélium-3 à haute pression : 0.56 de polarisation nucléaire à 32 mbar contre 0.11 obtenue par pompage optique en faible champ magnétique. Ce qui étend le domaine d'applicabilité du pompage optique par échange de métastabilité au domaine des fortes pressions.

Ces nouveaux schémas pour polariser nucléairement l'hélium-3 ouvrent la voie, pour les applications médicales, au développement d'un polariseur de gaz, simple, compact, compatible avec l'environnement hospitalier et opérant à forte pression et à 1.5 Tesla. Ces schémas offrent deux avantages considérables par rapport au pompage optique standard à faible pression et faible champ magnétique : simplification de la procédure de compression (1 : 30 ou 1 : 15 au lieu de 1 : 1000) et simplicité de préparation (moins de contrainte quant à la qualité de la polarisation du faisceau pompe).

Par ailleurs, nous avons travaillé sur la modélisation réaliste des processus intervenant dans le pompage optique à 1.5 Tesla et aux fortes pressions. Cette modélisation nous a permis de comprendre les spécificités du schéma de pompage en fort champ magnétique, en particulier la compétition entre les divers processus. À partir d'équations correspondant aux populations de tous les sous-niveaux du 2^3S_1 et du 2^3P , nous avons dérivé un modèle à 7 populations dans la limite des fortes pressions. Nous avons discuté dans ce cadre les performances du pompage optique. De plus, nous avons écrit des expressions analytiques du taux de pompage pour des fortes intensités laser et avons montré que les schémas de pompage à 1.5 Tesla présentent des limitations intrinsèques dépendant de la pression et de la

polarisation du gaz.

L'étude systématique comparative des résultats expérimentaux aux prédictions numériques nous a permis de mettre en évidence une dépendance de la densité d'atomes métastables vis à vis de l'orientation électronique du gaz dans le niveau métastable. Cette variation, que nous avons aussi vérifiée expérimentalement, peut être interprétée par une inhibition des collisions Penning auto-ionisantes.

De plus, les confrontations des mesures expérimentales aux prédictions numériques à $M = 0$ nous ont permis d'expliquer les comportements particuliers des pompes multi-transitions. Ces mesures nous ont également permis de caractériser le rendement quantique des schémas de pompage optique à 1.5 Tesla. En dépit du découplage hyperfin, le pompage optique à 1.5 Tesla conserve les propriétés intrinsèques de haut rendement quantique du pompage par échange de métastabilité et en champ magnétique faible.

Finalement, notre étude a mis en évidence des processus de relaxation de la polarisation nucléaire pendant le processus de pompage optique. La modification de la relaxation de la polarisation en présence du laser pompe a été observée pour diverses intensités de décharge, puissances laser et pressions. Ces processus de relaxation se sont avérés limitants pour les polarisations stationnaires obtenues et sont en partie responsables d'une diminution de la polarisation stationnaire au fur et à mesure que la pression du gaz augmente. Nous avons observé une augmentation de ces taux de relaxation avec la densité d'atomes dans l'état 2^3P . Toutefois, la dépendance en pression est très faible pour que nous puissions invoquer la formation de molécules He_2^* métastables comme suggéré par [Cou01]. À ce jour, nous n'avons pas de processus clairement identifié qui pourrait expliquer la relaxation observée. Afin d'obtenir une signature spécifique, notre étude sera poursuivie par la caractérisation de l'efficacité du pompage optique à pression élevée en explorant d'autres valeurs du champ magnétique. Nous pouvons de toute façon en attendre la détermination de conditions encore plus favorables au pompage optique à forte pression.

Annexe A

High nuclear polarization of ^3He at low and high pressure by metastability exchange optical pumping at 1.5 Tesla

Réf.[Abb04]. Publié dans Europhys. Lett. **68**, 480 (2004).

High nuclear polarization of ^3He at low and high pressure by metastability exchange optical pumping at 1.5 tesla

M. ABBOUD¹(*), A. SINATRA¹(**), X. MAÎTRE², G. TASTEVIN¹ and P.-J. NACHER¹

¹ *Laboratoire Kastler Brossel, Ecole Normale Supérieure*

24 rue Lhomond, 75005 Paris, France(***)

² *U2R2M, Université Paris-Sud and CIERM, Hôpital de Bicêtre*

94275 Le Kremlin-Bicêtre Cedex, France(**)

received 19 July 2004; accepted in final form 21 September 2004

published online 22 October 2004

PACS. 32.80.Bx – Level crossing and optical pumping.

PACS. 67.65.+z – Spin-polarized hydrogen and helium.

PACS. 87.61.-c – Magnetic resonance imaging.

Abstract. – Metastability exchange optical pumping of helium-3 is performed in a strong magnetic field of 1.5 T. The achieved nuclear polarizations, between 80% at 1.33 mbar and 25% at 67 mbar, show a substantial improvement at high pressures with respect to standard low-field optical pumping. The specific mechanisms of metastability exchange optical pumping at high field are investigated, advantages and intrinsic limitations are discussed. From a practical point of view, these results open the way to alternative technological solutions for polarized helium-3 applications and in particular for magnetic-resonance imaging of human lungs.

Introduction. – A gas of ground-state ^3He atoms in which a high degree of nuclear polarization is achieved offers an incredibly rich playground in various fields of science, from statistical or nuclear physics to biophysics and medicine [1]. Depending on the targeted application, the degree of nuclear polarization, the sample density, or the production rate of polarized atoms should be optimized. A recent application, which may have an important impact on the diagnosis of pulmonary diseases, is the polarized-gas magnetic-resonance imaging (MRI) [2]. Clinical studies to demonstrate the relevance of this new tool are under way in Europe and in the United States. Yet, if a wide expertise exists in MRI to adapt the existing imaging techniques to the case of polarized gases, the gas preparation remains a critical stage to be transferred from physics laboratories to hospitals. Two methods are presently used to polarize ^3He : spin-exchange with optically pumped alkali atoms [3] and pure-He metastability exchange optical pumping (MEOP) [4]. In standard conditions, MEOP is performed at

(*) E-mail: marie.abboud@lkb.ens.fr

(**) E-mail: alice.sinatra@lkb.ens.fr

(***) Laboratoire Kastler Brossel is a unité de recherche de l'Ecole Normale Supérieure et de l'Université Pierre et Marie Curie, associée au CNRS (UMR 8552).

(**) U2R2M (Unité de Recherche en Résonance Magnétique Médicale) is a unité de recherche de l'Université Paris-Sud, associée au CNRS (UMR 8081).

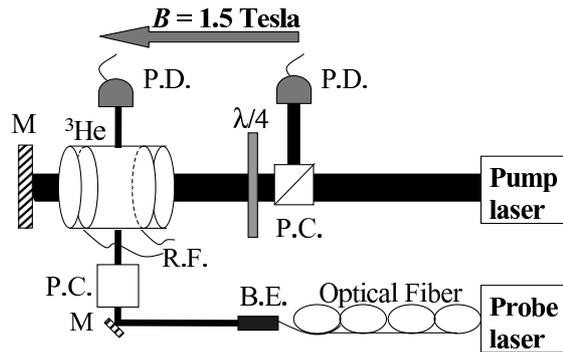


Fig. 1 – Experimental setup. The nuclear polarization is measured by the absorption of a transverse probe beam. B : static magnetic field, P.D.: photodiode, P.C.: polarizing beam-splitter, B.E.: beam expander, $\lambda/4$: quarter wave plate, M: mirror, R.F.: radio-frequency to excite the discharge.

low pressures (1 mbar) in a guiding magnetic field of the order of 1 mT. Circularly polarized light at 1083 nm, corresponding to the 2^3S - 2^3P transition of ^3He , is used to transfer angular momentum to the atoms and nuclear polarization is created by hyperfine coupling in the metastable 2^3S state. Through metastability exchange collisions, nuclear polarization builds up in the ground state. The steady-state nuclear polarization obtained by MEOP in standard conditions rapidly decreases if the pressure of the sample exceeds a few mbar (see below, fig. 5a) [5–7]. Therefore, a delicate polarization-preserving compression stage is necessary for MRI where the gas should be at atmospheric pressure for inhalation, and for all applications needing a dense sample. In this letter, the MEOP scheme is shown to withstand large hyperfine decoupling. A strong magnetic field of 1.5 T actually improves its performances with respect to standard low-field optical pumping. At 1.33 mbar, high nuclear polarizations of the order of 80% are routinely obtained with much lighter experimental constraints. At higher pressures, the achieved nuclear polarizations are dramatically increased compared to published low-field results. An elementary model with simple rate equations is used to account for these results.

Experimental setup and methods. – Experiments are performed in the bore of the 1.5 T superconducting magnet of a clinical MRI system. The experimental apparatus is sketched in fig. 1. The helium gas is enclosed in a sealed cylindrical Pyrex cell (diameter 5 cm, length 5 cm). Four cells filled with 1.33 mbar, 8 mbar, 32 mbar and 67 mbar of pure ^3He are used. A radio-frequency discharge at 3 MHz is sustained in the gas by external electrodes, leading to metastable atom densities n_m in the 0.3 – 3×10^{10} atoms/cm 3 range, depending on the applied voltage and on the gas pressure. The optical pumping laser is either a 50 mW single-mode laser diode amplified to 0.5 W [8], or a broad-band fiber laser (1.63 GHz FWHM) delivering 2 W [9]. The pump beam is back-reflected to enhance its absorption, which is monitored on the transmitted beam with a photodiode. At the entrance of the cell, the Gaussian transverse intensity profile of the pump beam has a FWHM of the order of 2 cm. A weak probe beam from a single-mode laser diode is used to measure the nuclear polarization. It is linearly polarized perpendicularly to the magnetic field (σ polarization). The discharge intensity is modulated at 133 Hz, and the probe absorption is measured with a lock-in amplifier. Laser sources and electronics remain several meters away from the magnet bore, in a low-field region.

At 1.5 T, due to Zeeman splitting, the energy levels of the 2^3S and 2^3P states are spread over 80 and 160 GHz, respectively (fig. 2a). Hyperfine decoupling in the 2^3S state is significant,

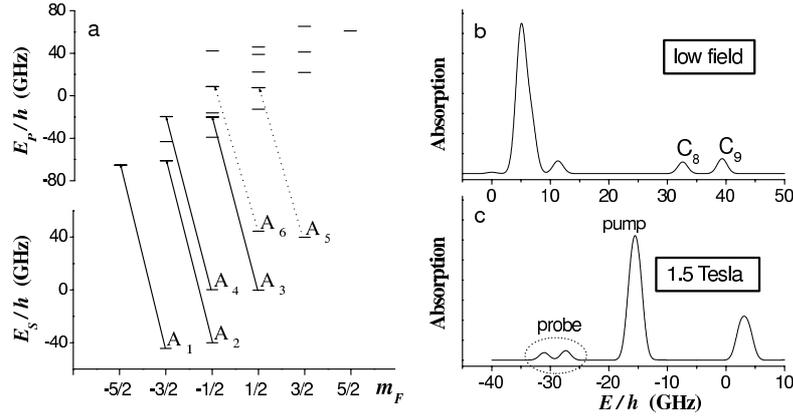


Fig. 2 – (a) Energies of the ^3He sublevels at 1.5 T for the metastable 2^3S state (E_S) and the 2^3P state (E_P). The transitions induced by the σ^- -polarized pump (solid lines) and probe (dotted lines) are displayed. Each pump transition has a matrix element T_{ij} close to 1 [10]. (b) Absorption spectrum at low magnetic field. (c) Absorption spectrum for σ^- light at 1.5 T. Vertical and horizontal scales are identical in (b) and (c). Level names A_1 to A_6 , energy zeros and spectral line positions are defined as in ref. [10].

so that the eigenstates of the Hamiltonian show only little mixing between different eigenstates $|m_J, m_I\rangle$ of the decoupled spin system, where m_J , m_I , and m_F denote the magnetic quantum numbers for the electronic, nuclear, and total angular momentum, respectively. As shown in fig. 2a, the 2^3S sublevels are arranged into three pairs of quasi-degenerate levels of increasing energies (A_1, A_2), (A_3, A_4), and (A_5, A_6) that correspond, respectively, to $m_J = -1, 0$, and 1 in the completely decoupled limit $B \rightarrow \infty$. For more details about the 2^3S level structure and the analytical expressions of eigenstates and energies, we refer the reader to ref. [10]. The absorption spectra at low magnetic field and at 1.5 T are displayed in figs. 2b and c, respectively. In standard MEOP, very high nuclear polarizations are obtained using C_8 or C_9 lines [6, 11]. Comparable polarizations are achieved at 1.5 T using the σ^- -strong pump line displayed in fig. 2c. All the results presented in this work are obtained with this pump transition. The performances and efficiencies of other optical-pumping transitions at 1.5 T will be reported elsewhere. The pump simultaneously addresses the four 2^3S sublevels A_1 to A_4 . Population transfer into the pair (A_5, A_6) is achieved by the following sequence: laser excitation, collisional redistribution in the 2^3P state and spontaneous emission. The ground-state nuclear polarization M is defined as $M = (n_+ - n_-)/(n_+ + n_-)$, where n_+ and n_- denote populations of the $m_I = 1/2$ and $m_I = -1/2$ nuclear spin states, respectively. In the absence of optical pumping, metastability exchange collisions impose a spin temperature distribution for the 2^3S sublevel populations, proportionally to $e^{\beta m_F}$, where $e^\beta = n_+/n_- = (1 + M)/(1 - M)$ [10]. The populations of sublevels A_5 and A_6 , not addressed by the pump, are probed to measure M . Examples of probe absorption spectra for an unpolarized and an optically pumped steady-state situation are shown in fig. 3a. M is inferred from the relative heights of the absorption peaks. The build-up of the polarization, as well as its decay when the pump is turned off, are monitored by tuning the probe laser frequency on the probe transition starting from the A_5 ($m_F = 3/2$) sublevel (fig. 3b). These measurement procedures operate at arbitrary magnetic field and pressure [10].

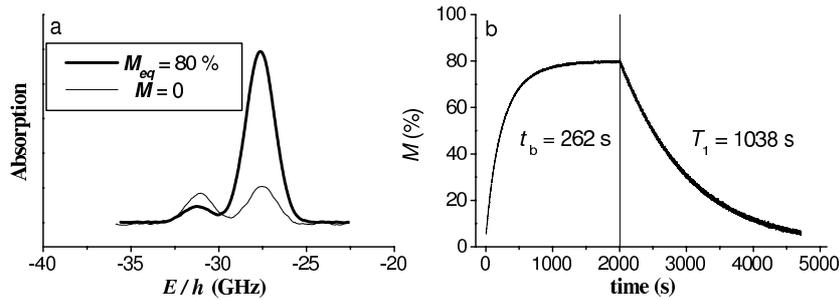


Fig. 3 – Examples of recorded signals in the 1.33 mbar cell: (a) absorption measurements on transitions from sublevels A_5 ($E/h = -27.36$ GHz) and A_6 ($E/h = -31.04$ GHz) at thermal equilibrium ($M \simeq 0$) and at steady-state nuclear polarization ($M = M_{eq}$) in an optically pumped gas. (b) Polarization build-up and discharge-induced decay deduced from changes of light absorption in sublevel A_5 . Pump laser is applied at time $t = 0$, and turned off after 2000 s.

Results. – The steady-state polarization M_{eq} and the polarization build-up time constant t_b in the 1.33 mbar cell are shown in figs. 4a and b as a function of the discharge-induced decay time T_1 . Over a wide range of moderate-to-weak discharges (T_1 ranging from 300 s to 1500 s), t_b (ranging from 60 to 350 s) is proportional to T_1 and the polarization achieved with the broad-band 2 W laser is high, about 80%, independently of T_1 . This behavior is specific to the high-field optical pumping, and contrasts with the standard low-field situation where a very weak discharge is required to obtain such large nuclear polarizations. For the strongest discharges, build-up times decrease (t_b ranging from 15 to 55 s) and steady-state polarizations

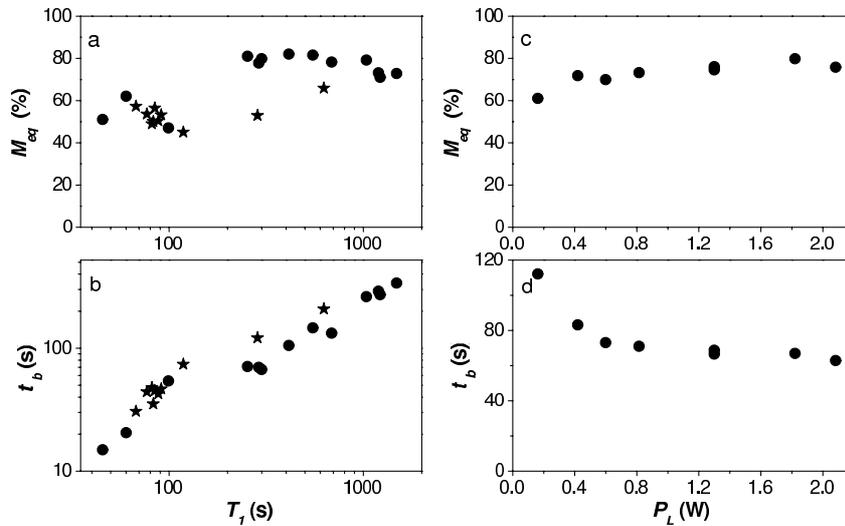


Fig. 4 – Results obtained at 1.5 T in the 1.33 mbar cell. (a) Steady-state polarization, and (b) polarization build-up time constant, as a function of the discharge-induced decay time of the polarization T_1 . Circles and stars: broad-band (2 W) and single-mode (0.5 W) pump lasers, both running at full power. (c) Steady-state polarization, and (d) polarization build-up time constant, as a function of incident laser power P_L . Data are obtained with the broad-band pump laser and for $T_1 = 300$ s.

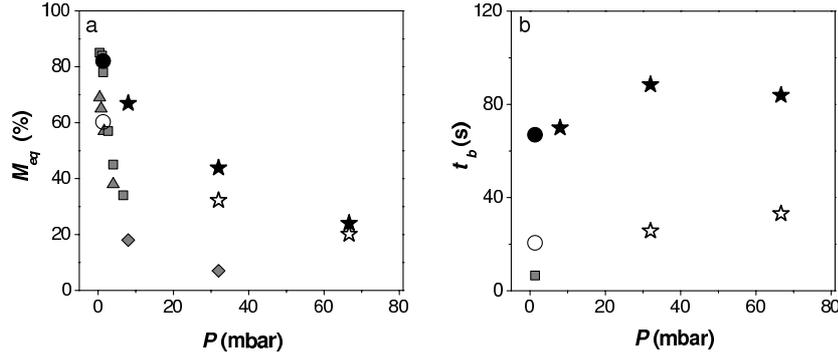


Fig. 5 – (a) Steady-state polarization, and (b) polarization build-up time constant, as a function of ^3He pressure P , at high and low magnetic fields. Circles and stars are 1.5 T data obtained with a broad-band (2 W) and single-mode (0.5 W) pump lasers, respectively. Filled (open) symbols are for weak (strong) discharge: $T_1 = 300$ (60), 2600, 1600 (325), and 1300 (700) s for 1.33, 8, 32, and 67 mbar, respectively. Triangles, squares, and diamonds are low-field data published in [5,6], and [7], respectively (all for weak discharges).

are lower. Figures 4c and d show the influence of the pump laser power for a given discharge ($T_1 = 300$ s). A laser power as low as 0.5 W is sufficient for the polarization and the build-up time to almost reach their asymptotic values. Similar studies of MEOP have been performed at higher pressures, where T_1 between 300 and 2600 s are measured. Selected results for a weak and a strong discharge at full laser power are shown in fig. 5 together with published low-field results. The polarizations obtained at high pressures are, to our knowledge, record MEOP values. The polarization build-up times weakly depend on ^3He pressure, in contrast with low-field MEOP [6,12].

Discussion. – An extension of the detailed model for standard MEOP [11] to high-field conditions [10] is required to compute the populations of all atomic sublevels. Here, for simplicity, an elementary model is used to account for the main observed features. We assume that i) atoms are fully pumped into the (A_5, A_6) pair, and ii) the populations of sublevels not addressed by the pump laser are imposed by the ground-state spin temperature which only depends on M : $a_5 = (1 + M)/2$ and $a_6 = (1 - M)/2$. The sublevel A_5 is totally oriented ($m_J = 1, m_I = 1/2$) and carries a nuclear angular momentum $\langle I_z \rangle = \hbar/2$, while A_6 has a small component on ($m_J = 0, m_I = 1/2$) and a large component on ($m_J = 1, m_I = -1/2$) and thus carries a nuclear angular momentum $\langle I_z \rangle = \hbar(\epsilon - 1)/2$ with $\epsilon = 1 \times 10^{-2}$ at 1.5 T [13]. The rate equation for M , resulting from relaxation and metastability exchange, is then

$$\frac{dM}{dt} = \frac{2\langle I_z \rangle / \hbar - M}{T_e} - \frac{M}{T_1} \quad \text{with } \langle I_z \rangle = \frac{\hbar}{2} \left(M + \epsilon \frac{1 - M}{2} \right),$$

where $1/T_e$ is the metastability exchange collision rate for a ^3He atom in the ground state ($1/T_e = n_m \times 1.53 \times 10^{-10} \text{ cm}^3/\text{s}$), and $2\langle I_z \rangle / \hbar$ is the nuclear polarization in the 2^3S state. One infers a steady-state polarization $M_{eq} = (1 + 2T_e/(\epsilon T_1))^{-1}$ and a build-up time $t_b = 2T_e M_{eq} / \epsilon$. Using values of n_m and T_1 measured in the absence of pumping beam, the predicted polarization is $M_{eq} \simeq 1$, at all pressures. The build-up times are in the range 20–300 s for the low-pressure cell, and in the range 15–40 s for the three high-pressure cells. Although this elementary model is clearly not sufficient to predict M_{eq} , it accounts reasonably well for

TABLE I – *Steady-state polarizations M_{eq} , build-up times t_{b} and production rates R_{a} (see text) vs. gas pressure P and laser power \mathcal{P}_{L} for the data in fig. 5 and other published data. Results in parenthesis correspond to strong discharges.*

Ref.	P (mbar)	\mathcal{P}_{L} (W)	M_{eq} (%)	t_{b} (s)	T_1 (s)	R_{a} (mbar/s)
this work	1.33	2.0	80 (60)	67 (20)	300 (60)	0.016 (0.039)
this work	8	0.5	67	70	2600	0.076
this work	32	0.5	44 (32)	88 (26)	1600 (325)	0.159 (0.401)
this work	67	0.5	24 (20)	84 (33)	1300 (700)	0.191 (0.405)
[12]	1	0.05	50 (40)	40 (9)	270 (40)	0.013 (0.047)
[14]	1.33	1.1	56 (39)	11 (2)	400 (10)	0.066 (0.266)
[6]	1.33	4.5	78 (45)	6.5 (0.3)	900 (15)	0.160 (2)

the observed dynamics. Its domain of validity and accuracy are estimated from detailed rate equations for the six 2^3S -sublevel populations. We find that in our experimental conditions and for the observed range of nuclear polarization, $2\langle I_z \rangle / \hbar$ given by the simple model differs from the exact value by a factor not exceeding 2, depending on M and on the gas pressure. This difference results from incomplete population transfer into (A_5, A_6) as well as from deviations of the order of ϵ of the populations a_5 and a_6 from their assumed spin-temperature values. In spite of its simplicity, the model sheds light on two key features: i) The dynamics of optical pumping at 1.5 T is intrinsically limited by hyperfine decoupling. ii) The build-up time, at least in the explored range of parameters, weakly depends on pressure and is affected only through changes of n_{m} and T_1 .

For application purposes, production rates of polarized atoms per unit volume $R_{\text{a}} = PM_{\text{eq}}/t_{\text{b}}$ are compared to published results for standard MEOP conditions and similar sealed cells in table I. At low pressure, production rates at high field are lower than those obtained with low-field optical pumping. Nevertheless, one can take advantage of the weak-pressure dependence of M_{eq} and t_{b} at 1.5 T to efficiently perform MEOP at higher pressure. By increasing the pressure from 1.33 to 32 mbar, a factor of 10 in R_{a} is gained and good production rates are recovered. For instance, gas in a 250 cc cell at 32 mbar can be polarized at 40% within 3 minutes. This amount of gas is suitable for small-animal lung imaging after compression to atmospheric pressure. For human lung MRI, considerable scaling-up or accumulation of polarized gas remains necessary. However, optical pumping around 50 mbar would considerably simplify the compression stage by reducing the compression ratio from 1 : 1000 down to 1 : 20.

An intrinsic advantage of the high-field MEOP scheme is that, due to the large Zeeman splittings in the 2^3S - 2^3P transition, the magnetic sublevels involved in optical pumping are selected by the frequency of the light, and not only by its polarization. High-field MEOP is therefore extremely robust against polarization impurity of the pumping light. This is a crucial issue for massive production of polarized ^3He using high laser power, since imperfect light polarization can severely limit achieved polarizations at low field [14].

Perspectives. – The nuclear polarization improvement observed at 1.5 T for high pressures is plausibly due to the inhibition by hyperfine decoupling of relaxation channels in atomic and/or molecular states in the plasma, as suggested by preliminary results at 0.1 T [7]. Further experiments at different magnetic-field intensities are planned to confirm this hypothesis. In this perspective, the present study provides a first set of data showing that, in spite of the large hyperfine decoupling in the 2^3S state, MEOP at high field i) still yields high nuclear polarizations at low pressures and ii) extends the domain of its applicability to higher pressures,

providing fair polarizations and high production rates. From a practical point of view, and in the perspective of a large-scale medical use of polarized gases, the development of a ^3He polarizer operating at 1.5 T (a widely used magnetic field in MRI), and at tens of mbar (for simplified compression) could be an attractive choice.

REFERENCES

- [1] BECKER J. *et al.*, *Nucl. Instrum. Methods A*, **402** (1998) 327.
- [2] MÖLLER H. *et al.*, *Magn. Res. Med.*, **47** (2002) 1029.
- [3] WALKER T. G. and HAPPER W., *Rev. Mod. Phys.*, **69** (1997) 629.
- [4] COLEGROVE F. D., SCHEARER L. D. and WALTERS G. K., *Phys. Rev.*, **132** (1963) 2561.
- [5] LEDUC M., CRAMPTON S. B., NACHER P.-J. and LALOË F., *Nucl. Sci. Appl.*, **1** (1983) 1.
- [6] GENTILE T. R. and MCKEOWN R. D., *Phys. Rev. A*, **47** (1993) 456.
- [7] NACHER P.-J. *et al.*, *Acta Phys. Pol. B*, **33** (2000) 2225.
- [8] CHERNIKOV S. V. *et al.*, *Electron. Lett.*, **33** (1997) 787.
- [9] TASTEVIN G. *et al.*, *Appl. Phys. B*, **78** (2004) 145.
- [10] COURTADE E. *et al.*, *Eur. Phys. J. D*, **21** (2002) 25.
- [11] NACHER P.-J. and LEDUC M., *J. Phys. (Paris)*, **46** (1985) 2057.
- [12] STOLTZ E. *et al.*, *Appl. Phys. B*, **63** (1996) 629.
- [13] With notations of ref. [10], $\epsilon = 2 \sin^2 \theta_+ = 1 \times 10^{-2}$ at 1.5 T.
- [14] LEDUC M., NACHER P.-J., TASTEVIN G. and COURTADE E., *Hyperline Interact.*, **127** (2000) 443.

Annexe B

Metastability exchange optical pumping of helium-3 at high pressures and at 1.5 Tesla : Comparison of two optical pumping transitions

Réf.[Abb05]. Publié dans Las. Phys. Jour. **15**, 475 (2005).

Metastability Exchange Optical Pumping of Helium-3 at High Pressures and 1.5 T: Comparison of Two Optical Pumping Transitions

M. Abboud^{1,*}, A. Sinatra¹, G. Tastevin¹, P.-J. Nacher¹, and X. Maître²

¹ Laboratoire Kastler Brossel, Ecole Normale Supérieure, 24 rue Lhomond, 75005 Paris, France*

*e-mail: marie.abboud@lkb.ens.fr

² U2R2M, Université Paris-Sud and CIERM, Hôpital de Bicêtre, 94275 Le Kremlin-Bicêtre Cedex, France**

Received October 2, 2004

Abstract—At low magnetic field, metastability exchange optical pumping of helium-3 is known to provide high nuclear polarizations for pressures around 1 mbar. In a recent paper, we demonstrated that operating at 1.5 T can significantly improve the results of metastability exchange optical pumping at high pressures. Here, we compare the performances of two different optical pumping lines at 1.5 T and show that either the achieved nuclear polarization or the production rate can be optimized.

1. INTRODUCTION

Highly polarized helium-3 gas is used in various fields of science, for example, to perform magnetic resonance imaging (MRI) of air spaces in human lungs [1, 2], or to prepare spin filters for neutrons [3] and polarized targets for nuclear physics [4]. The most successful methods presently used to polarize helium-3 are spin-exchange optical pumping using alkali atoms [5, 6] and pure-helium metastability exchange optical pumping [7, 8]. The applications have driven research towards improvement in terms of photon efficiency, steady-state polarization, and production rate, both for spin exchange optical pumping [9] and metastability exchange optical pumping [3, 10]. The metastability exchange technique was demonstrated by Colegrove, Scheerer, and Walters over forty years ago [7]. Under standard conditions, metastability exchange optical pumping is performed at low pressure (1 mbar) in a guiding magnetic field up to a few mT. Metastable 2^3S -state atoms are produced using a radiofrequency discharge. They are optically pumped using the 2^3S – 2^3P transition at 1083 nm. The electronic polarization is transferred to the nuclei by hyperfine interactions. Through metastability exchange collisions, nuclear polarization is transferred to ground-state helium-3 atoms. Metastability exchange optical pumping under standard conditions provides, in a few seconds, high nuclear polarizations (up to 90% at 0.7 mbar [11]). Unfortunately, the achieved nuclear polarization rapidly drops when the helium-3 pressure exceeds a few mbar [10, 12]. Therefore, a delicate polarization-pre-

serving compression stage is necessary for all applications needing dense samples.

We recently demonstrated that operation at 1.5 T can significantly improve the nuclear polarization at high pressure when one of the most intense lines of the 2^3S – 2^3P absorption spectrum is used [13]. Here, we show that a different choice of optical pumping transition can further improve the steady-state polarization, although the production rate is slightly lower. We also describe more precisely the experimental protocol, and we demonstrate the consistency of the optical absorption technique for dynamic measurements of nuclear polarization in the presence of optical pumping laser light.

2. EXPERIMENTAL

2.1. Setup

Experiments are performed in the bore of a clinical MRI scanner providing a homogeneous 1.5-T magnetic field. The experimental apparatus is shown in Fig. 1. The helium-3 gas is enclosed in a sealed cylindrical Pyrex cell, 5 cm in diameter and 5 cm in length. Cells filled with pure helium-3 at pressures $P = 1.33, 8, 32,$ and 67 mbar of are used. A radiofrequency high voltage applied to electrodes on the outside of the cell generates a weak electrical discharge in the gas. It is used to populate the 2^3S state and maintain the metastable-atom density n_m in the range $1\text{--}8 \times 10^{10}$ atoms/cm³, depending on the applied voltage and the gas pressure. The optical pumping laser is a 50-mW single-mode laser diode amplified by a 0.5-W ytterbium-doped fiber amplifier [14]. The laser wavelength can be tuned by temperature control over the entire spectrum of the 2^3S – 2^3P transition of helium (~ 150 GHz at 1.5 T, see Fig. 2). The circular polarization of the pump beam is obtained using a combination of a polarizing cube and a quarter-

*Laboratoire Kastler Brossel is a unité de recherche de l'Ecole Normale Supérieure et de l'Université Pierre et Marie Curie, associée au CNRS (UMR 8552).

**U2R2M (Unité de Recherche en Résonance Magnétique Médicale) is a unité de recherche de l'Université Paris-Sud, associée au CNRS (UMR 8081).

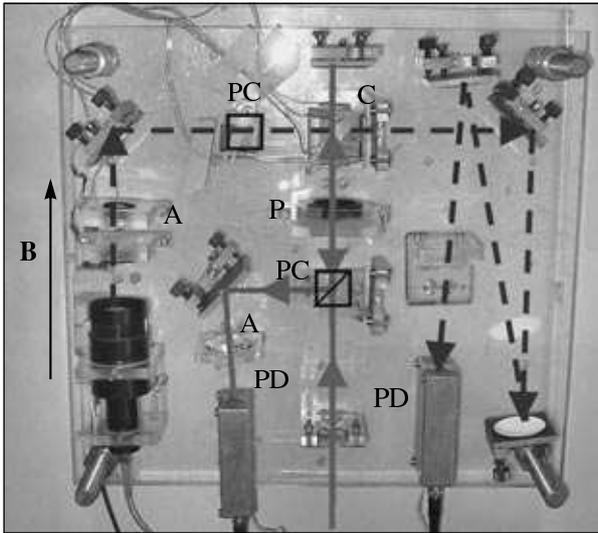


Fig. 1. Picture of the experimental apparatus of optical pumping at 1.5 T, showing the optical elements and the sealed optical pumping cell. The pump laser beam (solid arrow) is parallel to the magnetic field \mathbf{B} , and the probe laser beam (dashed arrow) is perpendicular to the magnetic field. C—optical pumping cell, PC—polarizing cube, P—quarter-wave plate, PD—photodiode, A—attenuator.

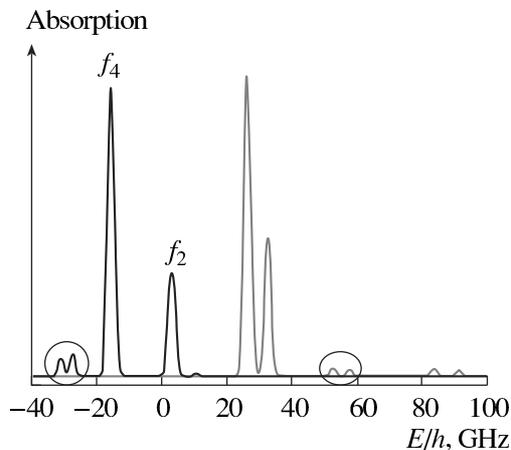


Fig. 2. Computed absorption spectra for σ^- (thick line) and σ^+ (thin line) light at 1.5 T. f_4 and f_2 are the two optical pumping lines used in our experiments. The circled peaks on the left and the right correspond to the probe lines used when the pump laser is tuned on f_4 and f_2 , respectively. Spectral-line positions are defined as in [15].

wave retarding plate. The pump beam is back-reflected after a first pass in the cell to enhance its absorption, and it is collected by a photodiode to measure this absorption. The probe beam is provided by another single-mode laser diode. It is attenuated, and it is linearly polarized perpendicularly to the magnetic field.

Absorptions of probe and pump lasers are measured using a modulation technique. The discharge intensity is modulated at 133 Hz, and the absorptions are measured with lock-in amplifiers. The average values of the transmitted probe and pump intensities are also recorded. Laser sources and electronics remain several meters away from the magnet bore in a low-field region.

2.2. Optical Pumping Configuration

The structure of the 2^3S-2^3P transition and of the Zeeman sublevels of helium-3 at 1.5 T is described in [13, 15]. In our experiments, optical pumping is performed using one of the two σ^- pumping lines labeled f_4 or f_2 in the absorption spectrum displayed in Fig. 2. The f_4 line consists of four unresolved transitions spreading over 1.31 GHz. Given the Doppler width of helium-3 at room temperature (2 GHz FWHM), it addresses simultaneously four metastable sublevels A_1 to A_4 with $m_F = -3/2, -1/2, 1/2$, where m_F is the magnetic quantum number for the total angular momentum (see Fig. 3). The f_2 line (two unresolved transitions separated by 1.37 GHz) simultaneously addresses sublevels A_5 and A_6 with $m_F = 1/2$ and $3/2$. The population transfer into A_5 and A_6 for f_4 pumping (or into A_1 to A_4 for f_2 pumping) occurs as follows: excitation by laser absorption, collisional redistribution in the 2^3P state, and spontaneous emission.

2.3. Optical Measurement of Nuclear Polarization

The optical detection method used in our experiments is based on absorption measurements using a weak probe beam. This absorption technique does not need any calibration and can be used at arbitrary magnetic field and pressure [15]. It relies on the fact that, in the absence of optical pumping, metastability exchange collisions impose a spin temperature distribution on the metastable populations $a_{m_F} \propto e^{\beta m_F}$, where $1/\beta$ is the spin temperature in the 2^3S state related to the nuclear polarization M in the ground state: $M = (e^\beta - 1)/(e^\beta + 1)$.

In practice, the probe laser frequency is swept over two lines. Peak amplitudes are precisely determined by a fit to a sum of Voigt absorption profiles. The population ratio of the two hyperfine sublevels addressed by the probe lines is then found using the field-dependent computed transition probabilities, and it is used to calculate the spin temperature. Hence, the ground-state nuclear polarization M is inferred [15].

Polarization build-up is monitored in the presence of the optical pumping beam. Therefore, the probe absorption measurements must involve metastable sublevels not addressed by the optical pumping laser. In our configuration (see Fig. 3), the populations of sublevels A_5 and A_6 or A_1 and A_2 are measured for f_4 or f_2 pumping, respectively. Figure 4a shows typical absorp-

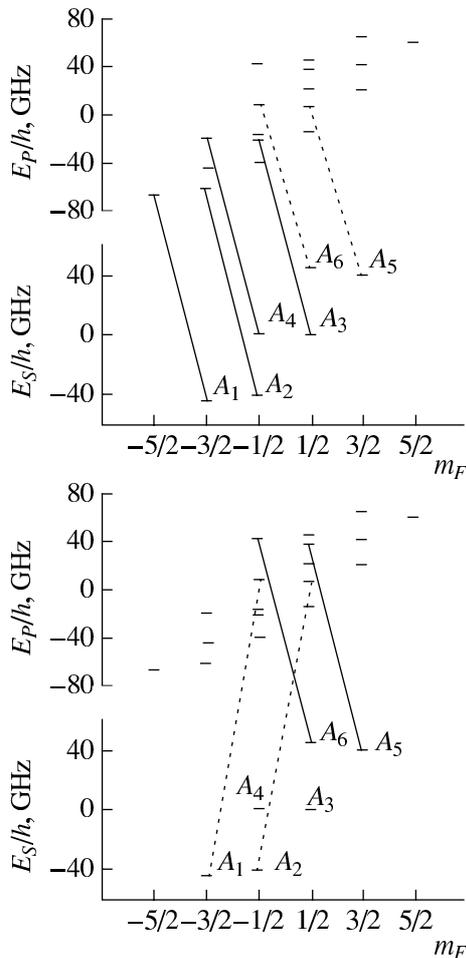


Fig. 3. Energies and magnetic quantum numbers m_F of the helium-3 sublevels at 1.5 T for the 2^3S (E_S) and 2^3P (E_P) states. The upper (lower) scheme corresponds to the f_4 (f_2) optical pumping configuration. The σ^- pumping transitions (solid lines) are displayed. The populations of the sublevels A_5 and A_6 (A_1 and A_2) not addressed by the f_4 (f_2) optical pumping transition are measured using the σ^- (σ^+) probe transitions (dashed lines). Sublevel names A_1 to A_6 and energy zeroes are defined as in [15].

tion spectra recorded in the absence and in the presence of the pump laser. In the absence of the pump laser (solid line), the spectrum is accurately fit assuming a spin temperature distribution (residue plot in Fig. 4b). The presence of the pump strongly affects the population distribution, through efficient population transfer from the pumped levels to A_5 and A_6 , and it modifies the absorption profile (dashed line). However, the ratio of populations in sublevels A_5 and A_6 remains unaffected, and the absorption measurement still accurately provides the correct value for M .

An example of dynamic measurement of polarization build-up and decay is shown in Fig. 5 for the 8-mbar cell. Several scans of the probe laser are succes-

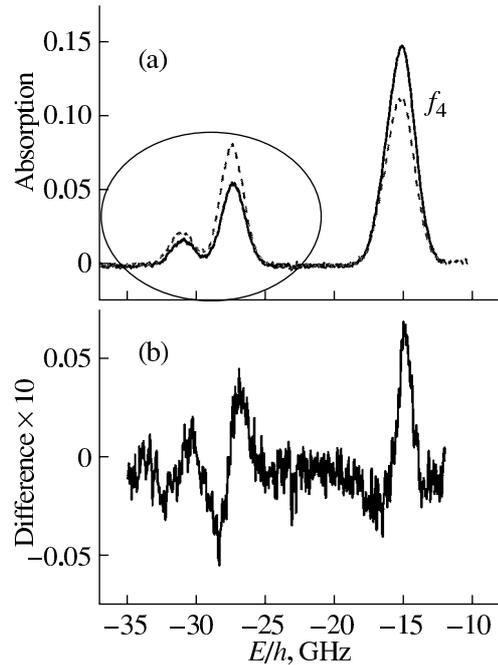


Fig. 4. (a) Absorption signals recorded with pump laser on (dashed line) and off (solid line). Measurements are performed in the 8-mbar cell with 0.25-W pump laser power for f_4 pumping after reaching $M_{\text{eq}} = 0.43$. The circled peaks involving sublevels A_5 and A_6 , which were not addressed by the pump laser, are used to compute M . (b) Residue plot showing the difference between the solid line data in Fig. 4a and a computed spin temperature distribution spectrum.

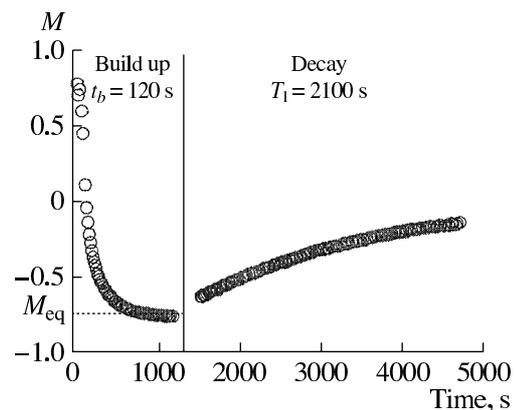


Fig. 5. Example of dynamic measurement of the nuclear polarization M in the 8-mbar cell. Starting from a gas prepared with $M > 0$ at time $t = 0$, the pump laser is tuned to the f_2 line with 0.5-W power. After reaching the steady-state nuclear polarization $M_{\text{eq}} = -0.75$, the pump laser is turned off at $t = 1300$ s, and the discharge-induced decay of the polarization is observed.

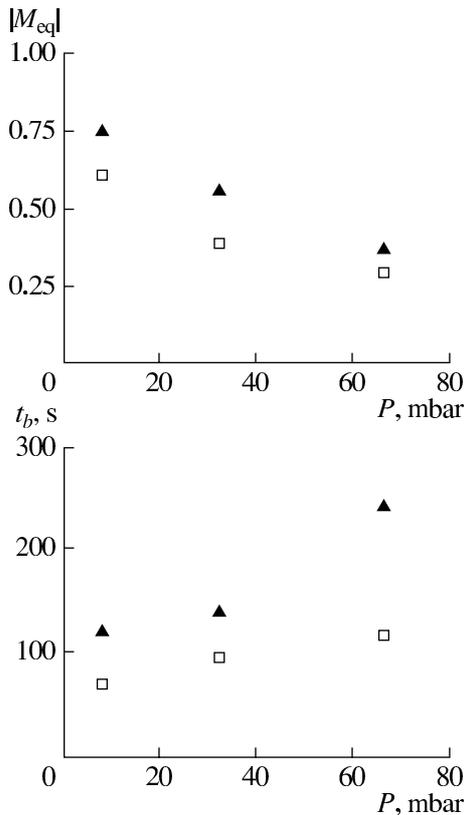


Fig. 6. Absolute values of steady-state nuclear polarizations M_{eq} and polarization build-up times t_b as a function of the helium-3 pressure P . Triangles and squares are data obtained when the pump laser (0.5 W) is tuned to f_2 or f_4 , respectively. The measured n_m and T_1 are as follows: at 8 mbar, 3.54×10^{10} at./cm³ and 2100 s; at 32 mbar, 2.47×10^{10} at./cm³ and 1490 s; at 67 mbar, 1.30×10^{10} at./cm³ and 1190 s.

sively recorded and the value of the nuclear polarization M is inferred as a function of time. The gas is initially polarized to the equilibrium positive value of M achieved with f_4 pumping. At a time $t = 0$, the pump laser is tuned to the f_2 line. When the new steady-state polarization M_{eq} is reached, the pump laser is turned off and polarization decays due to discharge-induced relaxation.

Magnetization production rates $R_a = P \times M_{eq}/t_b$ versus gas pressure for f_4 and f_2 pumping (data in Fig. 6)

P , mbar	R_a , mbar/s	
	f_4	f_2
8	0.07	0.05
32	0.13	0.12
67	0.17	0.11

3. RESULTS

Several experimental parameters influence the performance of optical pumping: the cell geometry; the gas pressure; the discharge conditions (voltage, electrodes configuration), which impact T_1 and n_m ; the optical pumping transition; and the pump laser power. A systematic study of optical pumping using the f_4 line was reported in [13]. Here, we focus on the comparison of optical pumping with f_4 and f_2 lines in the same cells. We present selected results obtained with identical discharge conditions for f_4 and f_2 laser 0.5-W pumping at power.

The f_2 line yields higher steady-state polarizations, but f_4 allows for pumping with significantly shorter build-up times (Fig. 6). As a result, the magnetization production rates $R_a = PM_{eq}/t_b$ are slightly lower for f_2 (see table). The main difference between the two optical pumping lines actually lies in the photon efficiency, defined as the number of polarized nuclei per photon absorbed by the gas. A simple calculation based on the average angular momentum transfer from polarized light to atoms during one absorption–collisional redistribution–spontaneous emission cycle shows that the photon efficiency of f_2 should be approximately twice that of f_4 . This has been experimentally checked at various laser powers. Yet, magnetization production rates for f_2 pumping are slightly lower, due to the lower absorption of the pump beam on this line with respect to f_4 .

4. DISCUSSION

We have compared the performances of two different optical pumping lines at 1.5 T in helium-3 gas at high pressures (up to 67 mbar). The strongest line in the σ^- absorption spectrum (f_4) yields the highest magnetization production rates. However, the highest steady-state nuclear polarizations (up to $M_{eq} = -0.75$ at 8 mbar) are achieved using a weaker line with higher photon efficiency, f_2 . Pumping with f_2 , requiring fewer absorbed photons to achieve the same production rate, is thus advantageous when long, optically thick pumping cells are used.

Given the structure of sublevels and optical transitions, one could expect that the two most intense σ^+ lines would be just as efficient as the corresponding σ^- lines. Similar optical pumping performances have indeed been obtained, although no systematic comparison has been carried out.

An analysis of all optical pumping data collected at 1.5 T is under way using a detailed model of metastability exchange optical pumping under high-field conditions, and it will be the subject of a forthcoming paper.

REFERENCES

1. M. S. Albert *et al.*, Nature **370**, 199 (1994).
2. H. Möller *et al.*, Magn. Reson. Med. **47**, 1029 (2002).
3. J. Becker *et al.*, Nucl. Instrum. Methods Phys. Res. A **402**, 327 (1998).
4. W. Xu *et al.*, Phys. Rev. Lett. **85**, 2900 (2000).
5. M. A. Bouchiat *et al.*, Phys. Rev. Lett. **5**, 373 (1960).
6. T. G. Walker and W. Happer, Rev. Mod. Phys. **69**, 629 (1997).
7. F. D. Colegrove *et al.*, Phys. Rev. **132**, 2561 (1963).
8. P.-J. Nacher *et al.*, J. Phys. (Paris) **46**, 2057 (1985).
9. E. Babcock *et al.*, Phys. Rev. Lett. **91**, 123003 (2003).
10. T. R. Gentile and R. D. Mckeown, Phys. Rev. A **47**, 456 (1993).
11. M. Batz *et al.*, NIST J. Res. (2005) (in press).
12. P.-J. Nacher *et al.*, Acta Phys. Pol. B **33**, 2225 (2000).
13. M. Abboud *et al.*, Europhys. Lett. **68**, 480 (2004).
14. S. V. Chernikov *et al.*, Electron. Lett. **33**, 787 (1997).
15. E. Courtade *et al.*, Eur. Phys. J. D **21**, 25 (2002).

Bibliographie

- [Abb04] M. Abboud, A. Sinatra, X. Maître, G. Tastevin, P.-J. Nacher ; High nuclear polarization of ^3He at low and high pressure by metastability exchange optical pumping at 1.5 tesla ; *Europhys. Lett.* **68** 480 (2004).
- [Abb05] M. Abboud, A. Sinatra, G. Tastevin, P.-J. Nacher, X. Maître ; Metastability exchange optical pumping of helium-3 at high pressures and at 1.5 tesla : Comparison of two optical pumping transitions ; *Las. Phys. Jour.* **15** 475 (2005).
- [Abr61] A. Abragam, *The Principles of Nuclear Magnetism*, Oxford University Press, p.319 (1961).
- [Aki00] H. Akimoto, R. van Rooijen, R. Jochemsen, G. Frossati, W. van Saarloos ; Melting process and interface instability of highly magnetized solid He-3 : Role of the magnetization gradient ; *Phys. Rev. Lett.* **85** 1894 (2000).
- [Alb94] M.S. Albert, G.D. Cates, B. Driehuys, W. Happer, B. Saam, C.S. Springer Jr, A. Wishnia ; Biological magnetic resonance imaging using laser-polarized ^{129}Xe ; *Nature* **370** 199 (1994).
- [Ami89] C.G. Aminoff , C. Larat, M. Leduc ; Optical-pumping of helium with arc lamp excited LNA lasers ; *Rev. Phys. Appl.* **24** 827 (1989).
- [And59] L.W. Anderson , F.M. Pipkin, J.C. Baird ; ^{14}N - ^{15}N hyperfine anomaly ; *Phys. Rev.* **116** 87 (1959).
- [Aug96] M.P. Augustine, K.U. Zilm ; Optical pumping magnetic resonance in high magnetic fields : Characterization of nuclear relaxation during pumping ; *J. Chem. Phys.* **105** 8 (1996).
- [Bab03] E. Babcock, I. Nelson, S. Kadlecik, B. Driehuys, L.W. Anderson, F.W. Hersman, T.G. Walker ; Hybrid spin-exchange optical pumping of ^3He ; *Phys. Rev. Lett.* **91** 123003 (2003).
- [Bar98] A. Ben-Amar Baranga, S. Appelt, M.V. Romalis, C.J. Erickson, A.R. Young, G.D. Cates, W. Happer ; Polarization of ^3He by spin-exchange with optically pumped Rb and K vapors ; *Phys. Rev. Lett.* **80** 2801 (1998).

- [Bar74] R. Barbé, M. Leduc, F. Laloë; Résonance magnétique en champ de radiofréquence inhomogène 1ère et 2ème parties; *J. Physique* **35** 699 (1974) et *J. Physique* **35** 935 (1974).
- [Bat] M. Batz, Thèse de doctorat de l'Université de Mayence, Allemagne (thèse en cours).
- [Bat05] M. Batz, S. Baeßler, W. Heil, E.W. Otten, D. Rudersdorf, J. Schmiedeskamp, Y. Sobolev, M. Wolf; ^3He spin filter for neutrons; *J. Res. Natl. Inst. Stand. Technol., Proceed. Precis. Meas. with Slow Neutrons*, 110, **3** May-June (2005).
- [Bec98] J. Becker, J. Bermuth, T. Grossmann, W. Heil, D. Hofmann, M. Leduc, E.W. Otten, D. Rohe, R. Surkau; Interdisciplinary experiments with polarized He-3; *Nucl. Instrum. Methods A* **402** 327 (1998).
- [Bec99] J. Becker, H.G. Andresen, J.R.M. Annand, K. Aulenbacher, K. Beuchel, J. Blume-Werry, T. Dombo, P. Drescher, M. Ebert, D. Eyl, A. Frey, P. Grabmayr, T. Grossmann, P. Hartmann, T. Hehl, W. Heil, C. Herberg, J. Hoffmann, J.D. Kellie, F. Klein, K. Livingston, M. Leduc, M. Meyerhoff, H. Moller, C. Nachtigall, A. Natter, M. Ostrick, E.W. Otten, R.O. Owens, S. Plutzer, E. Reichert, D. Rohe, M. Schafer, H. Schmieden, R. Sprengard, T. Steigerwald, K.H. Steffens, R. Surkau, T. Walcher, R. Watson, E. Wilms; Determination of the neutron electric form factor from the reaction $\text{He-3}(e,e'n)$ at medium momentum transfer; *Eur. Phys. J. A* **6** 329 (1999).
- [Bee04] E.J.R. van Beek, J.M. Wild, H.-U. Kauczor, W. Schreiber, J.P. Mugler, E.E. de Lange; Fonctionnal MRI of the lung using hyperpolarized ^3He helium gas; *Jour. Magn. Res. Imag.* **20** 540 (2004).
- [Bid03] C.P. Bidinosti, J. Choukeife, P.-J. Nacher, G. Tastevin; In vivo NMR of hyperpolarized He-3 in the human lung at very low magnetic fields; *J. Magn. Res.* **162** 122 (2003).
- [Big92] N.P. Bigelow, P.-J. Nacher, M. Leduc; Accurate optical measurement of nuclear polarization in optically pumped He-3 gas; *J. Physique II* **2** 2159 (1992).
- [Blo85] D. Bloch, G. Tréneç, M. Leduc; Isotope shift of the 2^3S_1 - 2^3P transition in helium; *J. Phys. B : At. Mol. Opt. Phys.* **18** 1093 (1985).
- [Bou60] M.A. Bouchiat, T.R. Carver, C.M. Varnum; Nuclear polarization in He-3 gaz induced by optical pumping and dipolar exchange; *Phys. Rev. Lett.* **5** 373 (1960).
- [Can94] D. Candela, M.E. Hayden, P.-J. Nacher; Steady-state production of high nuclear polarization in ^3He - ^4He mixtures; *Phys. Rev. Lett.* **73** 2587 (1994).

- [Cas79] B. Castaing, P. Nozières; Phase-transitions of spin-polarized helium-3- Thermodynamical nuclear orientation technique; *J. Physique* **40** 257 (1979).
- [Cha03] B. Chann, E. Babcock, L.W. Anderson, T.G. Walker, W.C. Chen, T.B. Smith, A.K. Thompson, T.R. Gentile; Production of highly polarized He-3 using spectrally narrowed diode laser array bars; *J. Appl. Phys.* **94** 6908 (2003).
- [Che97] S.V. Chernikov, J.R. Taylor, N.S. Platonov, V.P. Gapontsev, P.-J. Nacher, G. Tastevin, M. Leduc, M.J. Barlow; 1083 nm ytterbium doped fibre amplifier for optical pumping of helium; *Electronics Lett.* **33** 787 (1997).
- [Coh73] C. Cohen-Tannoudji, B. Diu, F. Laloë, *Mécanique Quantique*, volume I, Hermann (1973).
- [Coh73] C. Cohen-Tannoudji, B. Diu, F. Laloë, *Mécanique Quantique*, volume II, Hermann (1973).
- [Coh98] C. Cohen-Tannoudji; Manipulating atoms with photons; *Rev. Mod. Phys.* **70** 707 (1998).
- [Col63] F.D. Colegrove, L.D. Schearer, G.K. Walters; Polarization of He3 gas by optical pumping; *Phys. Rev.* **132** 2561 (1963).
- [Cou01] E. Courtage, *Pompage optique de l'hélium dans des conditions non-standard*, Thèse de doctorat de l'université Paris XI, Ecole Normale Supérieure, Paris, France (2001); disponible en ligne sur <http://theses-EN-ligne.ccsd.cnrs.fr/documents/archives0/00/00/14/47/>.
- [Cou02] E. Courtade, F. Marion, P.-J. Nacher, G. Tastevin, K. Kiersnowski, T. Dohnalik; Magnetic field effects on the 1083 nm atomic line of helium; *Eur. Phys. J. D* **21** 25 (2002).
- [Dan87] J.M. Daniels, L.D. Schearer, M. Leduc, P.-J. Nacher; Polarizing ^3He nuclei with neodymium $\text{La}_{1-x}\text{Nd}_x\text{MgAl}_{11}\text{O}_{19}$ lasers; *J. Opt. Soc. Am. B.* **4** 1133 (1987).
- [Dan05] A. Dantan, G. Reinaudi, A. Sinatra, F. Laloë, E. Giacobino, M. Pinard; Long-lived quantum memory with nuclear atomic spins; <http://arxiv.org/abs/quant-ph/0504152> v1 (20 Avril 2005).
- [Dar98] L. Darrasse, G. Guillot, P.-J. Nacher, G. Tastevin; Low field single shot ^3He MRI in human lungs; *Proc. Int. Soc. Mag. Res. Medicine*, Sydney **449** (1998).
- [Deh56] H.G. Dehmelt; Paramagnetic resonance reorientation of atoms and ions aligned by electron impact; *Phys. Rev.* **103** 1125 (1956).
- [Diu89] B. Diu, C. Guthmann, D. Lederer, B. Roulet, *Physique Statistique*, Hermann, p.79 (1989).

- [Dup71] J. Dupont-Roc, M. Leduc, F. Laloë; New value for the metastability exchange cross section in helium; *Phys. Rev. Lett.* **27** 467 (1971).
- [Dup73] J. Dupont-Roc, M. Leduc, F. Laloë; Contribution à l'étude du pompage optique par échange de métastabilité dans l' ^3He ; *J. Physique* **27** 961 (1973).
- [Ebe96] M. Ebert, T. Großmann, W. Heil, E.W. Otten, R. Surkau, M. Leduc, P. Bachert, M.V. Knopp, L.R. Schad, M. Thelen; Nuclear magnetic resonance imaging with hyperpolarized ^3He ; *The Lancet* **347** 1297 (1996).
- [Eck92] G. Eckert, W. Heil, M. Meyerhoff, E.W. Otten, R. Surkau, M. Werner, M. Leduc, P.-J. Nacher, L.D. Scheerer; A dense polarized ^3He target based on compression of optically pumped gas; *Nucl. Instrum. Methods A* **320** 53 (1992).
- [Emm88] F. Emmert, H.H. Angermann, R. Dux, H. Langhoff; Reaction kinetics of the $\text{He}(2\text{P})$ and the $\text{He}_2^*(A, \nu)$ in high density helium; *J. Phys. D - Appl. Phys.* **21** 667 (1988).
- [Fed96] P.O. Fedichev, M.W. Reynolds, U.M. Rahmanov, G.V. Shlyapnikov; Inelastic decay processes in a gas of spin-polarized triplet helium; *Phys. Rev. A* **53** 1447 (1996).
- [Fit67] W.A. Fitzimmons, G.K. Walters; Very long spin relaxation times in gaseous helium-3 by suppression of helium-3 - surface interactions; *Phys. Rev. Lett.* **19** 943 (1967).
- [Fit69] W.A. Fitzimmons, L.L. Tankersley, G.K. Walters; Nature of surface-induced nuclear-spin relaxation of gaseous helium-3; *Phys. Rev.* **179** 156 (1969).
- [Flo90] J.L. Flowers, B.W. Petley, M.G. Richards; An optically pumped ^3He maser operating at 0.1 T; *J. Phys. B : At. Mol. Opt. Phys.* **23** 1359 (1990).
- [Flo97] J.L. Flowers, C.J. Bickley, P.W. Josephs-Franks, B.W. Petley; Optically pumped ^3He NMR and atomic hydrogen ESR at 0.6 T; *IEEE Trans. Instrum. Meas.* **46** 104 (1997).
- [Fro98] G. Frossati; Polarization of He-3, D-2 and (eventually) Xe-129 using low temperatures and high magnetic fields; *J. of Low Temp. Phys.* **111** 521 (1998).
- [Gam65] R.L. Gamblin, T.R. Carver; Polarization and relaxation processes in ^3He gas; *Phys. Rev.* **138** A946 (1965).
- [Gen93] T.R. Gentile, R.D. McKeown; Spin-polarizing ^3He nuclei with an arc-lamp-pumped neodymium-doped lanthanum magnesium hexaluminate laser; *Phys. Rev. A* **47** 456 (1993).

- [Gen01] T.R. Gentile, D.R. Rich, A.K. Thompson, W.M. Snow, G.L. Jones; Compressing spin-polarized ^3He with a modified diaphragm pump; *J. Res. Natl. Inst. Stand. Technol.* **106** 709 (2001).
- [Gen03] T.R. Gentile, M.E. Hayden, M.J. Barlow; Comparison of metastability-exchange optical pumping sources; *J. Opt. Soc. Am. B.* **20** 2068 (2003).
- [Gui01] G. Guillot, P.-J. Nacher, G. Tastevin; NMR diffusion of hyperpolarized ^3He in aerogel : a systematic pressure study; *Magn. Res. Imag.* **19** 391 (2001).
- [Hei95] W. Heil, H. Humblot, E. Otten, M. Schafer, R. Sarkau, M. Leduc; Very long nuclear relaxation times of spin polarized helium-3 in metal coated cells; *Phys. Lett. A* **201** 337 (1995).
- [Her00] N. Herschbach, P.J.J. Tol, W. Hogervorst, W. Vassen; Suppression of Penning ionization by spin polarization of cold atoms $\text{He}(2^3\text{S})$ atoms; *Phys. Rev. A* **61** 050702 (2000).
- [Jac01] R.E. Jacob, S.W. Morgan, B. Saam, J.C. Leawoods; Wall relaxation of helium-3 in spin-exchange cells; *Phys. Rev. Lett.* **87** 143004 (2001).
- [Jac03] R.E. Jacob, B. Driehuys, B. Saam; Fundamental mechanisms of helium-3 relaxation on glass; *Chem. Phys. Lett.* **370** 261 (2003).
- [Kas66] A. Kastler, C. Cohen-Tannoudji, *Progress in Optics 5*, North Holland Publ. (1966).
- [Lal68] F. Laloë, Thèse de troisième cycle, Paris (1968).
- [Lal71] F. Laloë, *Étude des signaux de détection lumineuse dans une expérience de pompage optique. Orientation dans une décharge de niveaux atomiques excités*, Thèse de Doctorat d'État ès Sciences Physiques, Paris (1971).
- [Lan68] D.A. Landman; Lifetimes and alignment depolarization cross sections of the $(3p^54p)3D_3$ and $1D'_2$ levels in Argon and the $(1s2p)^3P$ term in Helium; *Phys. Rev.* **173** 33 (1968).
- [Led82] M. Leduc, G. Trenec; High power cw dye-laser emission around 888 nm; *Rev. Phys. Appl.* **17** 355 (1982).
- [Led00] M. Leduc, P.-J. Nacher, G. Tastevin, E. Courtade; Kinetics of helium-3 optical laser pumping; *Hyperfine Interactions* **127** 443 (2000).
- [Lor93] W. Lorenzon, T.R. Gentile, H. Gao, R.D. McKeown; NMR calibration of optical measurement of nuclear polarization in ^3He ; *Phys. Rev. A* **47** 468 (1993).
- [Maj93] J.S. Major, S. O'Brien, V. Gulgazov, D.F. Welch, R.J. Lang; High power singlemode Al-GaAs distributed Bragg reflector laser diodes operating at 856 nm; *Electronics Lett.* **29** 2121 (1993).

- [Mey94] M. Meyerhoff, D. Eyl, A. Frey *et al*; First measurement of the electric form factor of the neutron in the exclusive quasielastic scattering of polarized electrons from polarized ^3He ; Phys. Lett. B **327** 201 (1994).
- [Mol02] H.E. Möller, X.J. Chen, B. Saam, K.D. Hagspiel, G.A. Johnson, T.A. Altes, E.E. de Lange, H.U. Kauczor; MRI of the lungs using hyperpolarized noble gases; Magn. Res. in Medicine **47** 1029 (2002).
- [Nac79] P.-J. Nacher, *Relaxation nucléaire à basse température de ^3He à faible densité*, Thèse de doctorat de l'université de Paris VI, Ecole Normale Supérieure, Paris, France (1979).
- [Nac85a] P.-J. Nacher, *Observation d'ondes de spin dans un gaz d'hélium-3 polarisé par pompage optique laser*, Thèse de Doctorat d'État ès Sciences Physiques, Paris (1985).
- [Nac85b] P.-J. Nacher, M. Leduc; Optical pumping in ^3He with a laser; J. Physique **46** 2057 (1985).
- [Nac99] P.-J. Nacher, G. Tastevin, X. Maître, X. Dollat, B. Lemaire, J. Olejnik; A peristaltic compressor for hyperpolarised helium; Eur. Radiol. **9** B18 (1999).
- [Nac02] P.-J. Nacher, E. Courtade, M. Abboud, A. Sinatra, G. Tastevin, T. Dohnalik; Optical pumping of helium-3 at high pressure and magnetic field; Acta Phys. Pol. B **33** 2225 (2002).
- [New93] N.R. Newbury, A.S. Barton, G.D. Cates, W. Happer, H. Middleton; Gaseous ^3He - ^3He magnetic dipolar spin relaxation; Phys. Rev. A **48** 4411 (1993).
- [Par66] R.B. Partridge, G.W. Series; The transfer of coherence by collisions of ^3He atoms; Proc. Phys. Soc. **88** 983 (1966).
- [Pin74] M. Pinard, J. van der Linde; Disorientation of ^3He ^1D states in ^3He - ^3He collisions; Can. Journ. Phys. **52** 1615 (1974).
- [Pre92] W.H. Press, S.A. Teukolsky, W.T. Vetterling, B.P. Flannery, *Numerical Recipes in Fortran*, Second Edition, Cambridge University Press, p.59-63 (1992).
- [Ric02] D.R. Rich, T.R. Gentile, T.B. Smith, A.K. Thompson, G.L. Jones; Spin exchange optical pumping at pressures near 1 bar for neutron spin filters; Appl. Phys. Lett. **80** 2210 (2002).
- [Sch63] L.D. Schearer, F.D. Colegrove, G.K. Walters; Large ^3He nuclear polarization; Phys. Rev. Lett. **10** 108 (1963).
- [Sch65] L.D. Schearer, G.K. Walters; Nuclear spin-lattice relaxation in the presence of magnetic-field gradients; Phys. Rev. **139** A1398 (1965).
- [Sch67] L.D. Schearer; Collision-induced mixing in the 2^3P levels of helium; Phys. Rev. **160** 76 (1967).

- [Sch69] L.D. Schearer; Ion polarization via Penning collisions with optically pumped metastable helium; Phys. Rev. Lett. **22** 629 (1969).
- [Shi71] B. Shizgal; Kinetic theory calculation of the NMR relaxation time of dilute ^3He gas; J. Chem. Phys. **58** 3424 (1973).
- [Shl94] G.V. Shlyapnikov, J.T.M. Walraven, U.M. Rahmanov, M.W. Reynolds; Decay kinetics and Bose condensation in a gas of spin-polarized triplet helium; Phys. Rev. Lett. **73** 3247 (1994).
- [Sto96a] E. Stoltz, M. Meyerhoff, N. Bigelow, M. Leduc, P.-J. Nacher, G. Tastevin; High nuclear polarization in ^3He - ^4He gas mixtures by optical pumping with a laser diode; Appl. Phys. B **63** 629 (1996).
- [Sto96b] E. Stoltz, B. Villard, M. Meyerhoff, P.-J. Nacher; Polarization analysis of the light emitted by an optically pumped ^3He gas; Appl. Phys. B **63** 635 (1996).
- [Sur97] R. Surkau, J. Becker, M. Ebert, T. Großmann, W. Heil, D. Hofmann, H. Humblot, M. Leduc, E.W. Otten, D. Rohe, K. Siemensmeyer, M. Steiner, F. Tasset, N. Trautmann; Realization of a broad band neutron spin filter with compressed, polarized ^3He gas; Nucl. Instrum. Methods A **384** 444 (1997).
- [Tas04] G. Tastevin, S. Grot, E. Courtade, S. Bordais, P.-J. Nacher; A broad-band ytterbium-doped tunable fiber laser for ^3He optical pumping at 1083 nm; Appl. Phys. B **78** 145 (2004).
- [Wal97] T.C. Walker, W. Happer; Spin-exchange optical pumping of noble-gas nuclei; Rev. Mod. Phys. **69** 629 (1997).
- [Wol04] M. Wolf, *Highest He-3 nuclear spin polarization production by metastable exchange pumping*, Dissertation zur Erlangung des Grades Doktor der Naturwissenschaften am Fachbereich Physik der Johannes Gutenberg-Universität in Mainz, Mayence, Allemagne (2004); disponible en ligne sur : <http://ubm.opus.hbz-nrw.de/volltexte/2005/655/>.
- [Zha93] X. Zhao, P.A. Soletsky, W.H. Bryan, F.B. Dunning, G.K. Walters; Temperature dependence of $\text{He}(2^3\text{P}_J)$ reactions : Collision-induced mixing and conversion to $\text{He}_2(b^3\Pi_g)$ molecules; Phys. Rev. A **48** 4350 (1993).

Pompage optique de l'hélium-3 à forte pression dans un champ magnétique de 1.5 Tesla

Résumé : Nous présentons une étude expérimentale et théorique du pompage optique de l'hélium-3 par échange de métastabilité dans un champ magnétique de 1.5 Tesla entre 1 et 67 mbar. Une étude systématique nous permet de déterminer les conditions expérimentales favorables au pompage optique. À 1.5 Tesla, des polarisations nucléaires élevées et des taux de pompage importants sont obtenus à forte pression, ce qui étend le domaine d'applicabilité du pompage optique par échange de métastabilité. Une modélisation réaliste nous permet de comprendre les effets des divers processus entrant en jeu dans la physique du pompage. Nous montrons qu'en dépit du découplage hyperfin, le pompage optique à 1.5 Tesla conserve les propriétés intrinsèques de haut rendement quantique du pompage optique par échange de métastabilité habituel. L'étude comparée des valeurs expérimentales et théoriques de la polarisation nucléaire met en évidence un processus de relaxation de la polarisation dont le taux augmente avec la densité d'atomes dans le niveau excité 2^3P et avec la pression.

Mots clés : hélium-3, polarisation nucléaire, gaz polarisé, pompage optique par échange de métastabilité, laser 1083 nm, IRM des gaz polarisés

Optical pumping of helium-3 at high pressure in a 1.5 Tesla magnetic field

Abstract : We present an experimental and theoretical study of metastability exchange optical pumping of helium-3 in a 1.5 Tesla magnetic field in the pressure range 1-67 mbar. A systematic experimental study has allowed to determine good conditions for efficient optical pumping. At 1.5 Tesla, high nuclear polarizations and fast pumping rates are achieved at high pressure. This extends the domain of applicability of metastability exchange optical pumping. A realistic model allows to discuss the effects of the various involved processes on the efficiency of optical pumping. We show that, in spite of the hyperfine decoupling, optical pumping at 1.5 Tesla retains the high photon efficiency of usual metastability exchange optical pumping. The comparison between experimental and theoretical values of nuclear polarization reveals a relaxation process whose rate increases with the population of the 2^3P excited state and with the pressure.

Keywords : helium-3, nuclear polarization, polarized gas, metastability exchange optical pumping, laser 1083 nm, polarized gas MRI