



HAL
open science

Laser LNA de puissance, application au pompage optique de l'hélium-3 et des mélanges hélium-3/hélium-4

Christian Larat

► **To cite this version:**

Christian Larat. Laser LNA de puissance, application au pompage optique de l'hélium-3 et des mélanges hélium-3/hélium-4. Physique Atomique [physics.atom-ph]. Université Pierre et Marie Curie - Paris VI, 1991. Français. NNT : . tel-00011879

HAL Id: tel-00011879

<https://theses.hal.science/tel-00011879>

Submitted on 9 Mar 2006

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.

THESE DE DOCTORAT DE L'UNIVERSITE PARIS VI
spécialité : Physique Quantique

présentée par
Christian LARAT

pour obtenir le titre de
Docteur en Sciences de l'Université Paris VI

Sujet
**LASER LNA DE PUISSANCE ;
APPLICATION AU POMPAGE OPTIQUE DE L'HELIUM-3
ET DES MELANGES HELIUM-3/HELIUM-4**

soutenue le 25 octobre 1991 devant la Commission d'Examen :

M.	J. HAMEL, Président
M ^{me}	M. LEDUC
MM.	D. KAPLAN
	E. OTTEN
	D. VIVIEN

PLAN

INTRODUCTION	p.
PRELIMINAIRE - Principe du Pompage Optique dans l'hélium	p.
CHAPITRE I - Un laser pour le Pompage Optique de l'hélium	p.
I-1) Présentation du matériau LNA	p.
I-2) Cavité laser et zones de stabilité	p.
I-2-1) <u>Présentation d'une zone de stabilité</u>	p.
I-2-2) <u>Influence du rayon de courbure du barreau</u>	p.
I-2-3) <u>Influence du rayon de courbure d'un miroir</u>	p.
I-2-4) <u>Forme du mode laser intracavité</u>	p.
I-3) Performances du laser LNA	p.
I-3-1) <u>Echauffement du barreau et focale thermique</u>	p.
I-3-1-1) <i>Mesure de la distance de focalisation du barreau</i>	p.
I-3-1-2) <i>Evaluation de l'échauffement</i>	p.
I-3-2) <u>Seuil de l'effet laser, zones de stabilité et évaluation des pertes</u>	p.
I-3-2-1) <i>Seuil, évaluation des pertes et première zone de stabilité</i>	p.
I-3-2-2) <i>Première et deuxième zone de stabilité</i>	p.
I-3-2-3) <i>Conclusion</i>	p.
I-3-3) <u>Affinement et accord spectral</u>	p.
I-3-3-1) <i>Affinement et accord avec deux étalons solides</i>	p.
I-3-3-2) <i>Diminution des pertes de puissance par chauffage des étalons</i>	p.
I-4) Essai d'un nouveau matériau laser : le LMA:Cr,Nd	p.
I-4-1) <u>Caractérisation et propriétés lasers du LMA:Cr,Nd</u> (article)	p.
I-4-2) <u>Compléments à l'article précédent</u>	p.
I-4-2-1) <i>Principe du transfert d'énergie dans les matériaux codopés</i>	p.
I-4-2-2) <i>Echauffement dans le LMA:Cr,Nd ; comparaison de l'effet laser dans le LMA:Cr,Nd et le LNA</i>	p.
I-4-3) <u>Conclusion</u>	
I-5) Bilan et perspectives pour le LNA	p.
CHAPITRE II - Efficacité du Pompage Optique par laser dans l'hélium-3 pur et dans les mélanges hélium-3/hélium-4	p.
II-1) Modélisation du pompage optique dans les mélanges hélium-3/hélium-4	p.
II-1-1) <u>Notations</u>	
II-1-2) <u>Collisions d'échange de métastabilité</u>	p.

II-1-3) <u>Couplage des atomes avec le champ laser</u>	p.
II-1-4) <u>Relaxations</u>	p.
II-1-5) <u>Equations d'évolution globales et résolution</u>	p.
II-2) Valeurs de quelques paramètres	
II-2-1) <u>Temps d'échange de métastabilité</u>	p.
II-2-2) <u>Temps de relaxation</u>	p.
II-3) Décharge et densité de métastable	p.
II-3-1) <u>Laser monomode et mesures d'absorptions</u>	p.
II-3-2) <u>Absorption et densité de métastables</u>	p.
II-3-3) <u>Résultats</u>	p.
II-4) Mesure de la polarisation nucléaire	p.
II-4-1) <u>Calibration de la détection optique</u>	p.
II-4-2) <u>Le champ magnétique</u>	p.
II-4-3) <u>Résonance Magnétique Nucléaire</u>	p.
II-5) Résultats numériques et expérimentaux dans le régime linéaire	p.
II-5-1) <u>Dispositif expérimental et procédure</u>	p.
II-5-2) <u>Limites du régime linéaire : effet de $x = \frac{n_1}{n_4}$; puissance laser absorbée</u>	p.
II-5-3) <u>Evaluation du rapport $\frac{\tau_{dep}}{\tau}$ pour l'hélium-3 pur</u>	p.
II-5-4) <u>Résultats expérimentaux</u>	p.
II-6) Résultats numériques et expérimentaux à forte puissance laser	p.
II-6-1) <u>Dispositif expérimental</u>	p.
II-6-2) <u>Influence des paramètres du pompage mal connus sur les résultats numériques</u>	p.
II-6-3) <u>Effet du taux de polarisation circulaire du faisceau laser</u>	p.
II-6-4) <u>Temps de construction de la polarisation nucléaire</u>	p.
II-6-5) <u>Quelques résultats expérimentaux</u>	p.
II-7) Conclusion	p.
CONCLUSION	p.
APPENDICE A : Calcul de la distance de focalisation d'un barreau avec des faces courbes	p.
APPENDICE B : Détermination géométrique des zones de stabilité d'une cavité simple	p.
APPENDICE C : Calcul de la relation entre densité de métastables et absorption du faisceau	p.
APPENDICE D : Principe du calcul de l'intensité transmise par un ensemble de polariseurs et de lames $\lambda/4$ imparfaits	p.

Références bibliographiques P.

INTRODUCTION

Les deux isotopes de l'hélium ont des propriétés macroscopiques très particulières à basse température largement étudiées depuis la découverte de la superfluidité de l'hélium-4 dans les années 30. De plus, l'hélium-3 étant un fermion (spin nucléaire $I = \frac{1}{2}$) et l'hélium-4 un boson ($I = 0$), ils ne sont pas régis par les mêmes lois de statistique quantique. Leurs propriétés peuvent ainsi différer de façon spectaculaire (température de superfluidité, diagramme de phase, ...). Depuis un peu plus d'une décennie, un nouvel état de l'hélium est venu enrichir la famille des fluides quantiques : l'hélium-3 nucléairement polarisé, le taux de polarisation M ($-1 \leq M \leq 1$) des spins nucléaires pouvant être considéré comme une nouvelle grandeur thermodynamique pour ce fluide.

Depuis le premier congrès consacré aux systèmes quantiques de spins polarisés ("Spins Polarized Quantum System", *J. Physique Coll.* 41, (1980)) à Aussois en 1980, la recherche sur l'hélium-3 polarisé à basse température s'est beaucoup enrichie grâce au travail de plusieurs équipes tant en Europe qu'aux Etats-Unis. Ces développements ont été rendu possibles par les progrès des méthodes de polarisation des spins nucléaires de l'hélium-3.

La méthode la plus couramment utilisée pour polariser l'hélium-3 est celle dite "brute force", consistant à placer l'échantillon dans un champ magnétique intense à basse température. Ce procédé n'est efficace que pour l'hélium-3 solide ($M \sim 70\%$ à une température de $10mK$ dans un champ magnétique de $7T$ et sous une pression de $36atm$ []) ou en solution dans l'hélium-4. Suite à une suggestion de Castaing et Nozières [Castaing et al, 79], une rapide décompression du solide polarisé permet de fabriquer transitoirement de l'hélium-3 liquide polarisé. Des phénomènes très variés ont ainsi été étudiés, comme le diagramme d'équilibre solide/liquide ou la viscosité dans l'hélium-3 liquide ou en solution dans de l'hélium-4 superfluide (voir par exemple le compte-rendu de la troisième conférence "Spin Polarized Quantum Systems" à Turin en 1988 [Stringari, 89]).

Le principe du pompage optique inventé par Kastler a été appliqué au cas de l'hélium par [Colegrove et al., 63], le pompage optique ayant lieu à partir d'un niveau métastable. Notre équipe à l'ENS s'est alors attachée à développer une technique permettant de porter à basse température des échantillons d'hélium-3 polarisés à température ambiante par pompage optique. Certaines propriétés de transport ont été étudiées dans le gaz (ondes de spin [Tastevin, 87], conduction de la chaleur [Larat et al., 90]). D'autres expériences sont menées actuellement : étude du diagramme d'équilibre liquide/gaz de l'hélium-3 pur ; étude des solutions diluées d'hélium-3 dans l'hélium-4 ; extension de la gamme de température accessible par la construction d'un cryostat amagnétique, permettant ainsi de porter le liquide à une température inférieure à la température de Fermi (régime dégénéré).

Notons que l'intérêt de l'hélium-3 polarisé déborde largement du champ des basses températures. Ainsi, les magnétomètres à hélium sont utilisés pour mesurer de très faibles variations du champ magnétique terrestre ou spatial [Scheerer, 85]. Ces magnétomètres fonctionnent à toutes températures, consomment peu d'énergie et sont commercialisés aux Etats-Unis par Texas Instrument. De même, en physique nucléaire l'hélium-3 polarisé à température ambiante est utilisé comme cible pour des expériences de collisions ("scattering") destinées par exemple à mesurer la fonction d'onde des trois nucléons ou la structure électrique et magnétique du neutron [Woodward, 90]. L'hélium-3 polarisé peut également servir en physique nucléaire de filtre à état de spin du neutron pour polariser des faisceaux de neutron [Coulter et al., 90]. Pour une revue plus détaillée des applications de l'hélium-3 polarisé, se reporter à [Scheerer, 85] et [Leduc, 90].

Le but de mon travail a été d'améliorer les conditions du pompage optique de l'hélium pour pouvoir obtenir les fortes polarisations nucléaires nécessaires tant pour les expériences à basses températures en cours au laboratoire que pour les diverses applications de l'hélium polarisé à température ambiante. Pour ce faire, j'ai orienté mes recherches dans deux directions :

* développement d'un laser bien adapté au pompage optique de l'hélium ; il s'agissait ainsi de construire un laser à solide à la fois pratique d'emploi, de forte puissance (plusieurs watts en continu à $1,08\mu m$) et possédant des caractéristiques spectrales (longueur d'onde et structure de mode) requises par le pompage optique de l'hélium ;

* amélioration des taux de polarisation nucléaire par pompage optique ; ceci a comporté une étude des polarisations obtenues dans des mélanges hélium-3/hélium-4, avec une extension à ce cas d'un modèle existant rendant compte de la cinétique du pompage dans l'hélium-3 pur [Nacher et al, 85].

Ce mémoire se décompose ainsi en deux parties. Le premier chapitre décrit le laser à *LNA* pompé transversalement par lampes et les caractéristiques de la cavité laser. Il expose également les premiers résultats relatifs à un nouveau matériau laser : le *LMA : Cr, Nd*. Le deuxième chapitre présente des résultats expérimentaux et numériques sur le pompage optique dans les mélanges hélium-3/hélium-4 et dans l'hélium-3 pur. Deux régimes sont explorés : faible puissance laser (quelques milliwatts) et fortes puissances laser (quelques watts).

Avant de commencer le chapitre I, nous avons jugé utile de rédiger un court préliminaire rappelant le principe du pompage optique dans l'hélium et les caractéristiques spectrales devant être vérifiées par le laser.

PRELIMINAIRE

PRINCIPE DU POMPAGE OPTIQUE DANS L'HELIUM

Il existe plusieurs méthodes pour polariser nucléairement l'hélium-3 gazeux dans son état fondamental $1^1S_0 (F = 1/2)$. La plus simple conceptuellement est de placer le gaz dans un champ magnétique intense (méthode dite "brute force"). Mais, pour un champ de $10T$ et à une température de $1K$, la polarisation nucléaire à l'équilibre n'est que de l'ordre de 1%. Pour des températures plus basses, la pression de vapeur saturante de l'hélium-3 devient très faible. Il n'est donc pas possible d'obtenir, par cette méthode, de l'hélium-3 gazeux fortement polarisé. La méthode "brute force" est également inefficace pour le liquide : pour $T \lesssim 0,4K$, le liquide forme un système de Fermi dégénéré de relativement faible susceptibilité magnétique, imposant une polarisation nucléaire d'environ 2% pour un champ de $10T$.

La technique du pompage optique, inventée par Kastler [Cohen-Tannoudji et al, 66], [Happer, 72], permet d'obtenir, en champ magnétique faible, des polarisations électroniques pour de nombreux atomes et éventuellement une polarisation nucléaire dans leur état fondamental. Dans le cas de l'hélium-3, cette technique peut être appliquée à deux systèmes : d'une part les mélanges hélium/alcalins et d'autre part pour l'hélium pur ou un mélange des deux isotopes. Dans le premier système, le pompage optique est effectué sur l'alcalin, la polarisation étant transférée lors de collisions d'échanges de spins entre alcalins et hélium [Bouchiat et al, 60]. Des polarisations de 60% ont ainsi été obtenues [Coulter et al, 90]. Pour le deuxième système (hélium pur ou mélangé avec son isotope) le pompage optique est effectué à partir du niveau métastable de l'hélium 2^3S_1 , d'après une idée de Colegrove, Scheerer et Walters [Colegrove et al, 63]. Nous allons décrire plus en détail les principes de cette technique dans la suite de ce préliminaire.

P.1 - Structure de l'hélium-3 et de l'hélium-4, paramètres, ordres de grandeur

Les premiers niveaux de l'hélium sont portés sur la figure P-1 ainsi que leur durée de vie. Le pompage optique est effectué à une longueur d'onde de $1,08\mu m$ entre le niveau métastable 2^3S_1 et le niveau excité 2^3P_1 . Le niveau 2^3S_1 est métastable car la transition $2^3S_1 \rightarrow 1^1S_0$ est interdite par les règles de sélection sur les nombres quantiques. De fait, dans un gaz d'hélium, les atomes métastables sont détruits soit sur les parois de la cellule, soit lors d'une collision avec une impureté. En prenant suffisamment de précautions lors du remplissage des cellules pour les dégazer, on peut estimer que la durée de vie des métastables est de l'ordre de grandeur du temps de diffusion de ces atomes vers la paroi de la cellule ⁽¹⁾. Les atomes métastables sont créés par une décharge radiodréquence.

Sur la figure P-2 sont reportés les niveaux 2^3S_1 et $2^3P_{0,1,2}$ pour l'hélium-4 et les trois raies (D_0, D_1, D_2) correspondantes, ainsi que la structure hyperfine de ces mêmes niveaux pour l'hélium-3 et les 9 raies (C_1 à C_9) s'y rattachant, l'hélium-3 ayant un spin nucléaire non-nul ($I = 1/2$). Les positions et intensités relatives de ces douze raies sont détaillées figure P-3, leurs écarts en fréquence étant regroupés dans le tableau P-1. On remarque ainsi que le déplacement isotopique met quasiment en coïncidence les raies D_1 de l'hélium-4 et C_9 de l'hélium-3. Les largeurs Doppler d'absorption pour les deux isotopes sont détaillées dans le tableau P-2. Donc, dans le gaz à température ambiante, les groupes de raies D_1, D_2 pour l'hélium-4 et C_2 à C_5 et C_6, C_7 pour l'hélium-3 ne sont pas entièrement résolus.

P.2 - Pompage optique de l'hélium-3

La polarisation du fondamental $1^1S_0 (F = 1/2)$ de l'hélium-3 obtenue directement par pompage optique vers le niveau $2^1P_1 (F = 1/2, 3/2)$ n'est pas praticable pour deux raisons : la longueur

⁽¹⁾ Par exemple, dans une cellule cylindrique de $5cm$ de diamètre et $5cm$ de longueur, le temps caractéristique du mode de diffusion le plus lent (τ_{11}) est de $1,5ms$ pour une pression de $1torr$ d'hélium-3.

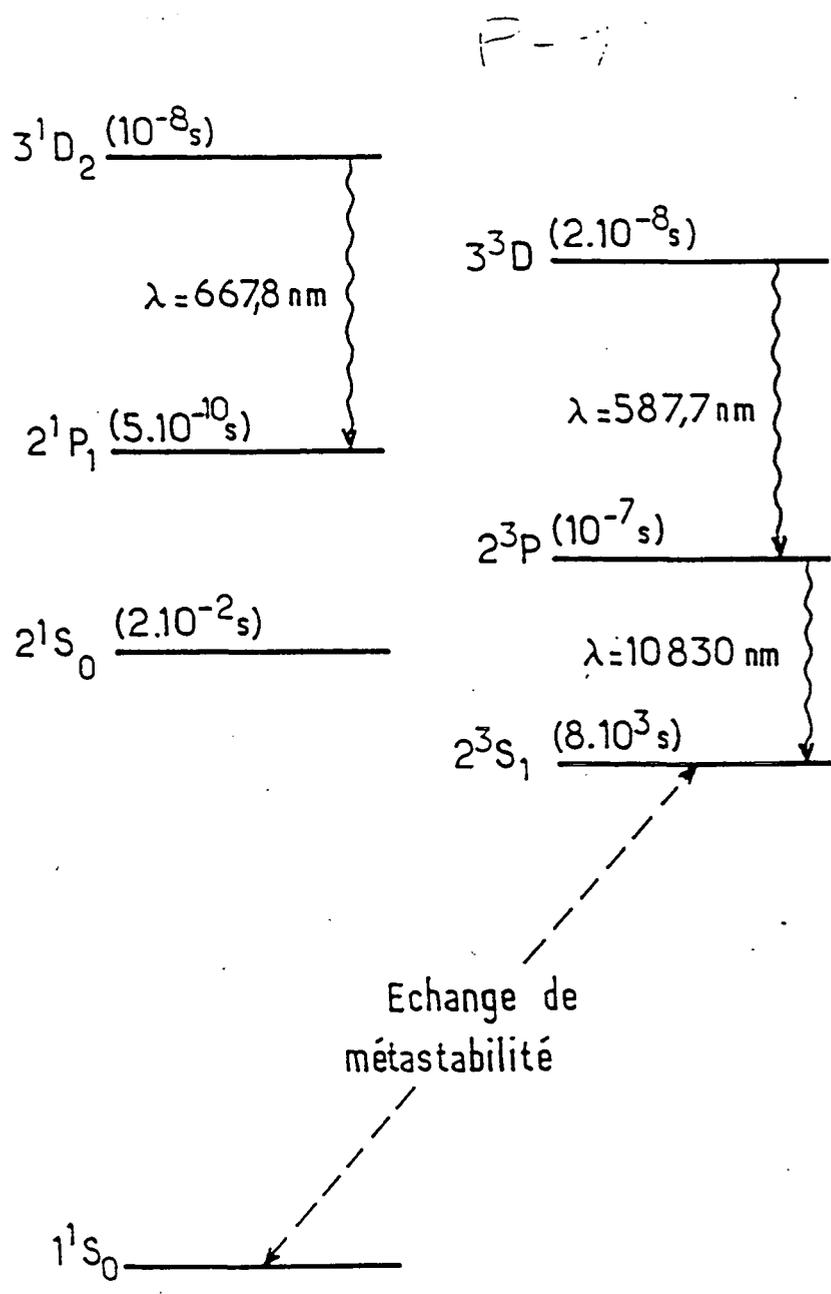


Figure P-1
Schéma des premiers niveaux de l'hélium. On a indiqué leur durée de vie et la longueur d'onde de quelques transitions.

6 bis

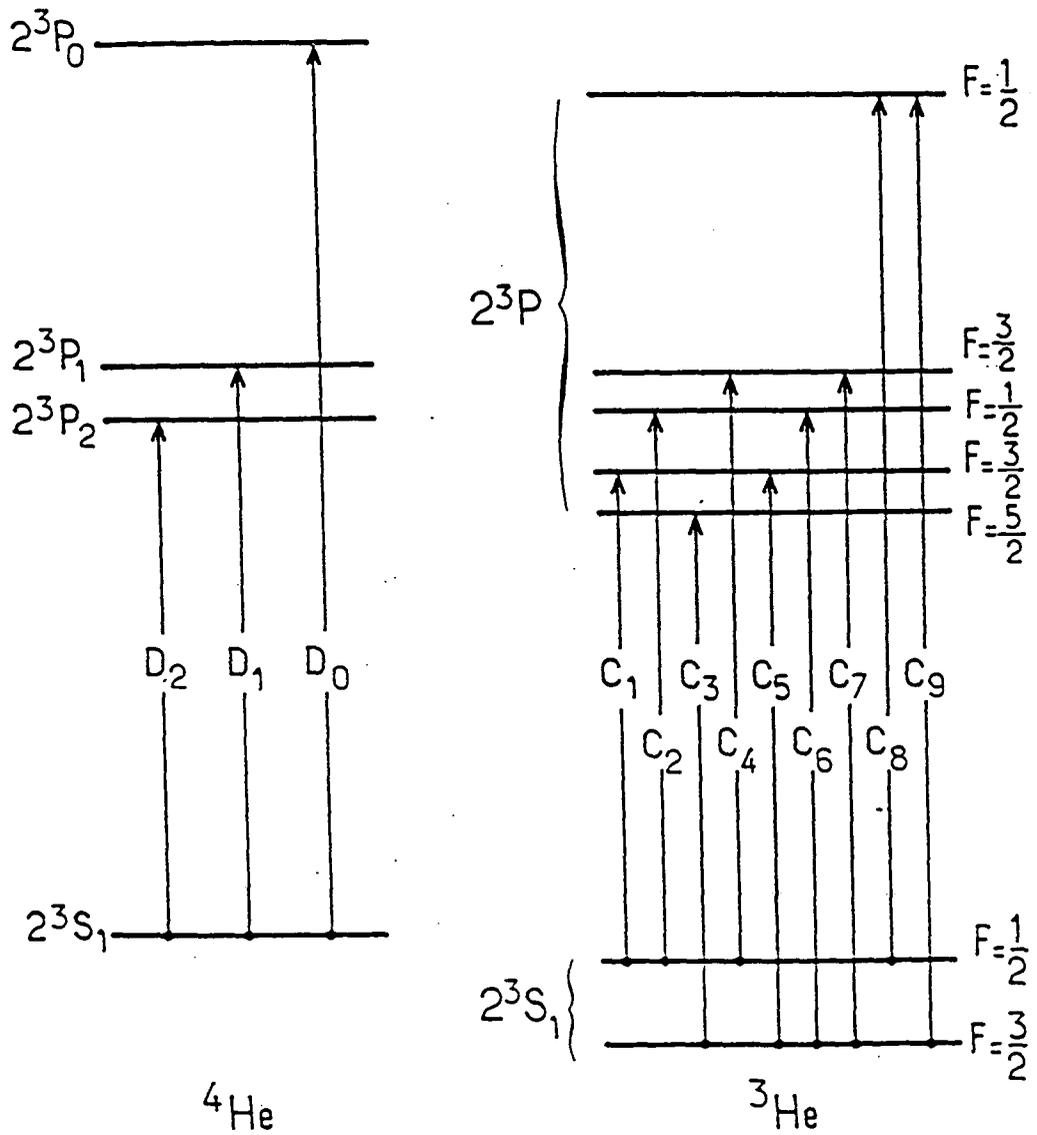


Figure P-2

Niveaux 2^3S et 2^3P de l'hélium : structure fine et transition D_0 , D_1 , D_2 pour l'hélium-4. Structure hyperfine et transition C_1 à C_9 pour l'hélium-3.

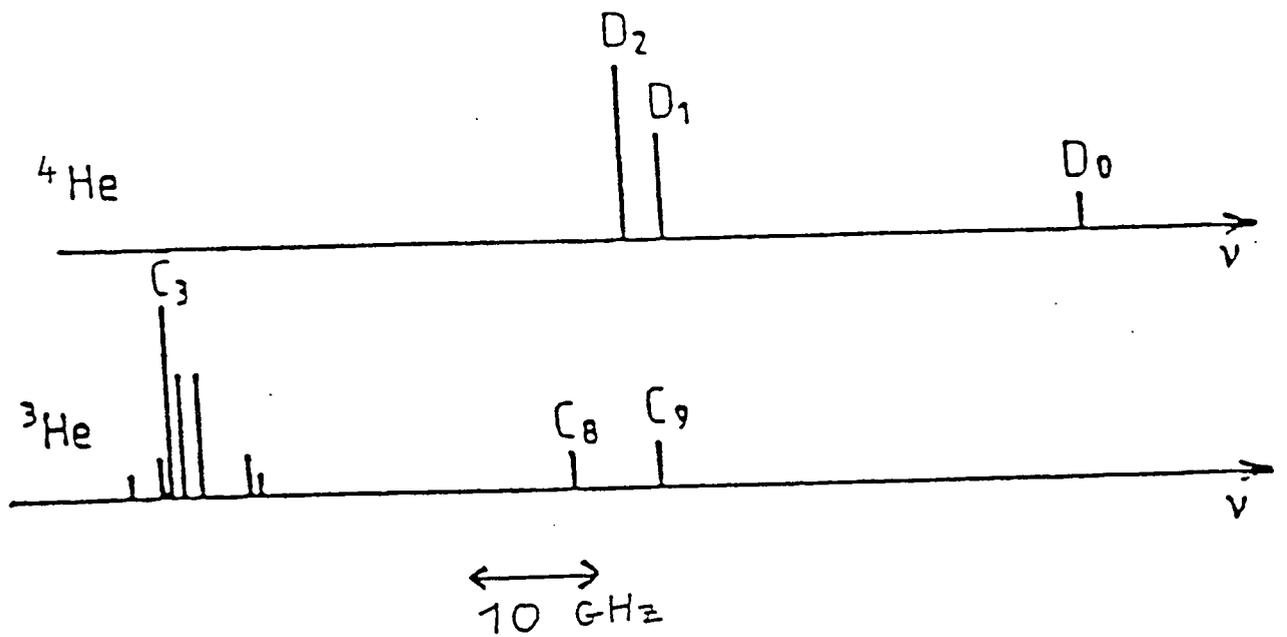


Figure P-3
 Position relative des raies de l'hélium-4 (en haut) et de l'hélium-3 (en bas).

6 quarts

d'onde de la transition est de $58,5nm$ et la structure hyperfine est trop petite pour créer une orientation nucléaire de l'état excité pendant sa durée de vie.

La méthode développée par F.D. Colegrove, L.D. Scheerer et G.K. Walters [Colegrove et al, 63] peut être qualifiée de pompage optique "indirect" car elle utilise comme relais le niveau métastable. Les atomes métastables sont polarisés par pompage optique sur la transition $2^3S_1 \rightarrow 2^3P$ et leur orientation est transférée à l'état fondamental lors de collisions dites "d'échange de métastabilité" (cf. figure P-1). Cet échange de métastabilité intervient lors de collisions mettant en jeu un atome dans l'état fondamental et un atome dans l'état métastable. Les noyaux des deux atomes peuvent alors échanger leur nuage électronique. Le résultat est que le noyau de l'atome sortant de la collision dans l'état fondamental provient de l'atome métastable qui était polarisé par le pompage optique. Cette description suppose que le temps d'interaction est très court ($\sim 10^{-13}s$) : dans ces conditions, $\langle I_z \rangle$ est conservée et $\langle J_z \rangle$ est transférée à l'autre atome [Dupont-Roc et al, 73]. Ce processus devient inefficace à basse température, le temps caractéristique entre deux collisions de ce type devenant très long devant les temps de relaxation (de l'ordre de la seconde).

Ce pompage optique, initialement réalisé avec des lampes à décharges d'hélium, est maintenant effectué avec des lasers. En effet, si une polarisation nucléaire de 20% de l'hélium-3 dans son état fondamental peut aisément être obtenue avec une puissance de l'ordre du milliwatt, il faut des puissances de plusieurs watts pour obtenir des polarisations supérieures à 75% (cf. figure P-4) [Nacher et al, 85]. Cette saturation est dû essentiellement au caractère indirect du pompage optique et justifie le besoin de développer des lasers intenses accordables sur les raies de l'hélium.

Tableau P-1

Ecart énergétique (en GHz) entre quelques transitions de l'hélium-3
et de l'hélium-4 (cf. figure P-3).

<i>hélium - 3</i>		<i>hélium - 4</i>	<i>hélium - 3/hélium - 4</i>
$C_1 - C_2$ 4,51		$D_2 - D_1$	$C_8 - D_2$
$C_2 - C_5$ 2,23		$D_1 - D_0$	$D_2 - C_9$
$C_5 - C_6$ 4,51			$C_9 - D_1$
$C_6 - C_7$ 0,74			
$C_7 - C_8$ 20,65			
$C_8 - C_9$ 6,74			

Tableau P-2

Largeur Doppler d'absorption de l'hélium-3 et de l'hélium-4 (D en GHz) pour diverses températures. Cette largeur est la demi-largeur à $\frac{1}{e}$ de la distribution des vitesses : $D = \sqrt{\frac{2kT}{M\lambda_0^2}}$, avec : λ_0 : longueur d'onde dans le vide de la transition pour un atome au repos ; M : masse de l'atome ; k : constante de Boltzmann ; T : température du gaz.

<i>température</i>	<i>hélium - 3</i>	<i>hélium - 4</i>
300 K	1,19 GHz	1,03 GHz
77 K	0,60 GHz	0,52 GHz
4,2 K	0,14 GHz	0,12 GHz

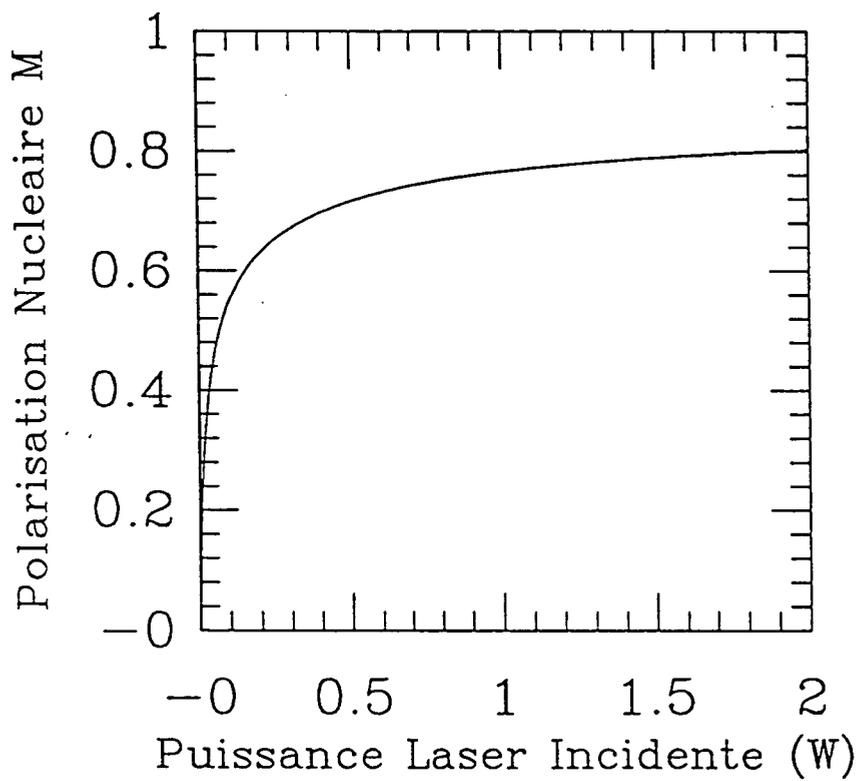


Figure P-4

Calcul de la polarisation nucléaire de l'hélium-3 en fonction de la puissance laser incidente (raie C_9 , pression de 0,8 torr) (d'après [15]).

CHAPITRE I

UN LASER POUR LE POMPAGE OPTIQUE DE L'HELIUM

Au début des années 80, le lancement des premières expériences sur l'hélium-3 polarisé à basse température a clairement fait apparaître la nécessité d'un laser à $1.08\mu\text{m}$. En effet, le pompage optique de l'hélium, initialement réalisé avec des lampes à décharges [Colegrove et al, 89], ne permettait pas d'atteindre des polarisations nucléaires pour l'hélium-3 supérieures à 20% [Happer, 72], [Timsit et al, 71]. Cette situation a rapidement évolué au début des années 80 lors de l'apparition des premiers lasers opérant en continu à la longueur d'onde nécessaire [Mollenauer, 80], [Trenec et al, 82]. En effet, l'hélium-3 a pu alors être polarisé nucléairement jusqu'à 70% [Nacher et al, 82] grâce à un laser à centres colorés (F_2^{+*} dans NaF) avec 300mW sur trois modes longitudinaux consécutifs. Ce laser était d'une utilisation très astreignante car les centres colorés devaient être créés avec un accélérateur Van de Graff et ils avaient une durée de vie courte (quelques jours). Le montage nécessitait de plus l'alignement de trois lasers successifs. Le besoin d'un matériau d'emploi plus aisé se fit alors très nettement ressentir. Le YAG:Nd (grenat d'yttrium et d'aluminium : $\text{Y}_3\text{Al}_5\text{O}_{12}$) connaissait déjà un grand succès grâce notamment à une transition intense à $1,064\mu\text{m}$ entre le niveau métastable $^4F_{3/2}$ et le niveau $^4I_{11/2}$ de l'ion néodyme. La proximité de cette longueur d'onde et de celle de la transition de l'hélium incita alors à rechercher d'autres cristaux pouvant supporter un dopage en néodyme. En effet, pour chaque type de matrice, l'ion néodyme voit un champ cristallin qui dépend de ses plus proches voisins, ce qui déplace différemment ses niveaux d'énergie. Par exemple dans le niobate de lithium (LiNbO_3), le composé LuAlO_3 et le YAP (YAlO_3), le néodyme présente entre autres une bande d'émission à $1,084\mu\text{m}$, $1,083\mu\text{m}$ et $1,080\mu\text{m}$ respectivement [Kaminskii, 81], pouvant a priori convenir pour le pompage optique de l'hélium. Un barreau de YAP fut essayé dans une tête laser YAG commerciale en pompage continu transversal par lampes [Bohler et al, 88]. L'accord en fréquence était difficile, la longueur d'onde souhaitée se trouvant dans le pied de la bande de gain. Sur les transitions de l'hélium, ce laser délivra une puissance 500mW avec une largeur supérieure à 4GHz , à comparer avec la largeur Doppler d'absorption de l'hélium-3 qui est de l'ordre de $1,2\text{GHz}$ (cf. Préliminaire). La polarisation nucléaire de l'hélium-3 ne dépassa pas 55% avec ce laser YAP dans notre laboratoire. De même, le niobate de lithium fut essayé en pompage continu par un laser Kr^+ [Scheerer et al, 87] ce qui donna une puissance laser d'environ 60mW centrée sur la raie de l'hélium. Malheureusement, ce matériau ne se trouva pas disponible en grands barreaux pour un pompage par lampes.

Un nouveau matériau apparut alors et fut testé en pompage continu par laser à Kr^+ ou Ar^+ : le LNA ($\text{LaMgAl}_{11}\text{O}_{19}$ dopé au néodyme) [Vivien et al, 84], [Scheerer et al, 86] fabriqué au LETI (CEA CENG, Grenoble). Pour une puissance de 300mW répartie sur deux modes (séparés de 200MHz), on obtenait une polarisation nucléaire de l'hélium-3 de 60%. Bien que ces résultats soient un peu moins bons que ceux du laser à centres colorés, la simplicité d'emploi apportée par la stabilité dans le temps des propriétés du matériau fit utiliser ce laser de façon routinière pour des expériences nécessitant de l'hélium-3 polarisé. Le LNA put également être pompé longitudinalement par une diode laser, ce qui permit de réaliser de petits lasers utilisables par exemple pour la magnétométrie [Aubert et al, 89], [Hamel et al, 87], ou pour mesurer des taux de polarisation ou des densités de métastables par absorption.

Il est clair que la solution d'avenir pour obtenir de fortes puissances réside dans les lasers à solide pompés transversalement par lampes, selon le modèle du laser à YAG. Celui-ci en effet délivre couramment des puissances de 500W . Pour transposer ces résultats au cas du LNA, le problème a été pendant plusieurs années la difficulté d'obtenir par tirage des cristaux à la fois de grande dimension et de bonne qualité optique. Au début de ma thèse, des échantillons répondant à ces critères commencèrent à être disponibles : tout d'abord des barreaux de 6cm de long en provenance du L.E.T.I. et ensuite de 10cm de long en provenance de Union Carbide Corporation (San Diego, Californie, U.S.A.). Nous nous sommes donc d'abord attachés à la mise au point de ce nouveau laser en tenant compte des difficultés d'emploi de ce matériau : mauvaise

conductivité thermique de la matrice qui produit des effets de focalisation par le barreau gênants à forte puissance, ainsi qu'une tendance à la rupture. Nous avons également conduit une étude préliminaire sur un nouveau matériau laser : le $LMA:Cr,Nd$, qui est du LNA dopé non seulement avec du néodyme mais également avec du chrome. De tels dopages, déjà réalisés pour d'autres types de matrices (par exemple le grenat de gadolinium scandium gallium $GSGG:Cr,Nd$ [Prus et al, 82], [Lundt et al, 90]), ont pour but d'améliorer le pompage par lampes de ces matériaux notamment grâce à une meilleure absorption des lampes (bandes d'absorption du chrome plus larges que celles du néodyme) et à un transfert d'énergie entre espèces dopantes.

Après une présentation rapide du matériau (dopage élevé, conductivité thermique faible), je décrirai l'influence de divers paramètres (longueur de la cavité, rayons de courbure et transmission des miroirs) sur la stabilité d'une cavité laser contenant un barreau siège d'un effet de lentille thermique. J'exposerai alors les performances du laser LNA construit. En particulier, j'évaluerai les effets d'échauffement et de lentille thermique ainsi que les pertes du matériau. Je présenterai également la méthode utilisée pour l'affinement spectral. Le $LMA:Cr,Nd$ a ensuite été comparé au LNA pour ses performances lasers. L'ensemble de ces résultats, encore préliminaires car nous ne disposons que d'un seul barreau, sont cependant très prometteurs. Ils ont été rapportés dans un article ⁽¹⁾. Celui-ci est repris en intégralité dans ce chapitre I avec quelques compléments sur le transfert d'énergie dans les matériaux codopés ainsi qu'un essai de comparaison de seuil du rupture du LNA et du $LMA:Cr,Nd$ en terme d'échauffement.

I-1) Présentation du matériau LNA

Aujourd'hui, le meilleur cristal dans le domaine des lasers à solides est incontestablement le YAG dopé néodyme qui, par pompage continu par lampes, délivre actuellement des centaines de watts. L'effet laser pour les matériaux dopés au néodyme s'effectue du niveau métastable ${}^4F_{3/2}$ vers les niveaux ${}^4I_{9/2}$, ${}^4I_{11/2}$, ${}^4I_{13/2}$ et ${}^4I_{15/2}$, ce qui correspond à des émissions autour de $0,9\mu m$, $1,05\mu m$, $1,35\mu m$ et $1,8\mu m$ respectivement. Le LNA a été découvert récemment [Kahn et al, 81]. Dans le YAG, le néodyme se place en surnombre dans la structure cristalline alors que dans le LNA il se substitue à la place du lanthane. Le LNA supporte ainsi des taux de dopage en néodyme plus élevé (de l'ordre de 15% par maille cristalline) contre environ 1% pour le YAG, ce qui correspond à des concentrations de $5,1 \cdot 10^{20} cm^{-3}$ contre $1,4 \cdot 10^{20} cm^{-3}$ [Kahn et al, 81]. Nous disposons ainsi d'un matériau qui, toutes choses égales par ailleurs, a potentiellement un plus fort gain à volume donné que le YAG. Il faut évidemment nuancer cette affirmation en termes d'efficacité de couplage entre les lampes d'excitation et le néodyme, de puissance maximale d'excitation supportée par le matériau, de force d'oscillateur de la transition, de pertes dans le barreau, etc... De plus, le LNA a des bandes d'émission (centrées sur $1,05\mu m$, $1,06\mu m$ et $1,08\mu m$) qui sont très élargies car le néodyme peut occuper trois sites différents dans la matrice correspondant à des champs cristallins différents. L'accordabilité du LNA est ainsi potentiellement plus grande que celle du YAG. Enfin, son point de fusion plus bas que celui YAG facilite sa fabrication. Notons pour finir que le LNA fait l'objet d'une étude dans le cadre du programme européen "lasers de puissance".

Contrairement au YAG, le LNA est anisotrope. Il a une structure de type magnétoplumbite [Kahn et al, 81] (cf. figure I-1). On définit ainsi l'axe c du cristal comme étant perpendiculaire au plan miroir de la structure (axe extraordinaire) et l'axe a perpendiculairement à c ⁽¹⁾. Sous

⁽¹⁾ "Characterization and laser properties of lanthanum magnesium hexaaluminate activated by neodymium and chromium", Aminoff C.G., Larat C., Leduc M., Viana B., Vivien D., *J. Lumin.* 50, 21 (1991).

⁽¹⁾ $n_a = 1,7767 \pm 0,0010$ et $n_c = 1,7692 \pm 0,0010$ à $\lambda = 1,064\mu m$ [Bagdasarov et al, 83] (n =indice de réfraction).

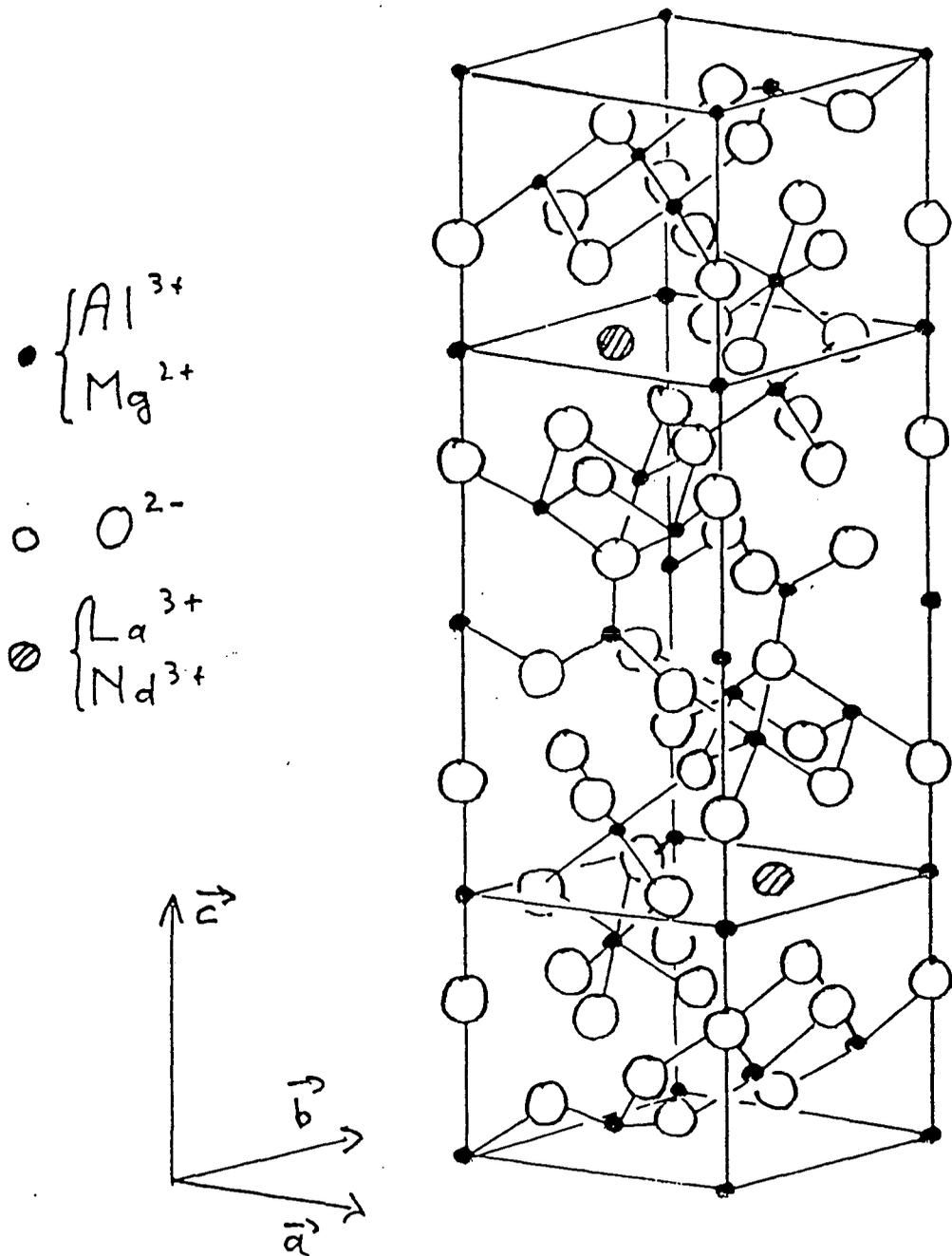


Figure I-1

Cellule unité du LNA ($La_{1-x}Nd_xMgAl_{11}O_{19}$), structure de type magnétoplumbite. Les trois axes cristallographiques a , b et c sont également représentés. On peut également définir l'axe a^* perpendiculairement au plan défini par a et c .

excitation longitudinale par un laser à argon, l'effet laser est plus intense dans la direction de l'axe c [Vivien et al, 84]. Les longs barreaux disponibles sont taillés selon l'axe a , la technologie actuelle (méthode de Czochralski) ne permettant pas d'obtenir de long barreaux taillés suivant l'axe c avec une qualité optique suffisante. Aussi, a priori, ne réunissons-nous pas les conditions optimales pour avoir un effet laser le plus intense possible.

Une autre particularité du *LNA* est sa conductivité thermique qui est deux à trois fois plus faible que celle du *YAG*, et de surcroît anisotrope ⁽²⁾. Ainsi, comme environ 7% (cf § I-3-1-2) de la puissance électrique fournie aux lampes ($P_{elec} \sim 2kW$) est dissipée sous forme de chaleur dans le barreau, il se crée un gradient radial de température qui induit à son tour un gradient radial d'indice. Le barreau se comporte alors comme une sorte de lentille épaisse dont la distance focale varierait avec la puissance d'excitation des lampes. Ces effets de lentille thermique sont évidemment déterminants pour le choix de la cavité laser (cf. § I-3-1). Il est possible de les réduire en ajoutant du chrome dans la matrice précédente. En effet, la densité optique du milieu devenant alors importante (plusieurs cm^{-1} , cf. § I-4-1) la chaleur est principalement dissipée près de la surface du barreau, ce qui diminue d'autant le gradient thermique au centre du barreau où passe le faisceau laser.

Mais, si l'effet de lentille thermique peut être compensé par un choix judicieux des éléments de la cavité optique, nous n'avons pas encore trouvé la parade (pour le pompage par lampes) aux contraintes infligées au matériau par effet de dilatation différentielle. Ainsi, plusieurs barreaux se sont clivés de façon tout à fait analogue selon un plan perpendiculaire à l'axe c : sur une profondeur de deux à trois millimètres à partir de la surface et sur une grande partie de la longueur du barreau. On peut penser que ces clivages sont initiés à la surface du barreau par des microcraquelures résultant du carottage de la boule de Czochralski. Nous avons voulu faire traiter un de nos barreaux suivant la procédure utilisée pour le *YAG* [Leroux, 91], mais l'attaque chimique fut inopérante (ce traitement avait pour but d'éliminer la couche superficielle du barreau où se trouve ces microcraquelures). La puissance laser est ainsi limitée par le seuil de rupture du barreau qui interdit d'utiliser toute la puissance disponible des lampes d'excitation.

I-2) Cavité laser et zones de stabilité

Un formalisme a été développé au laboratoire [Metcalf et al, 87] pour calculer le mode gaussien TEM_{00} d'une cavité contenant un élément cylindrique qui présente un gradient radial d'indice linéaire ($\frac{dn}{dr} = r \times cste$). C'est précisément le cas pour un barreau laser pompé transversalement par lampes si on suppose que l'échauffement du barreau est uniforme. Un programme numérique, basé sur ces calculs, permet de simuler une cavité laser et d'en faire varier divers paramètres : rayon de courbure des miroirs, distances intracavité, échauffement du barreau. Nous avons ainsi la possibilité de savoir si telle configuration de cavité est stable ou non et de connaître la forme du faisceau en tout point.

Il faut noter que ce formalisme décrit uniquement la stabilité d'un mode TEM_{00} dans une cavité donnée. Il ne prend pas en compte les autres modes transversaux possibles, ni l'aspect spectral du laser (la cavité forme un interféromètre de Fabry-Perot), ni le caractère amplificateur du barreau laser. Aussi ce modèle permet uniquement d'affirmer qu'en dehors des zones de stabilité le laser ne fonctionne pas. Ce modèle ne prend pas non plus en compte le caractère anisotrope du *LNA*, tant pour sa conductivité thermique que pour son indice de réfraction.

L'échauffement du barreau est caractérisé par une grandeur sans dimension P_a/P_o . P_a est la puissance absorbée et dissipée dans le barreau sous forme d'un flux de chaleur et est directement

(2) $\kappa_a = 60mWK^{-1}cm^{-1}$; $\kappa_c = 40mWK^{-1}cm^{-1}$ (*YAG* : $\kappa = 130mWK^{-1}cm^{-1}$) [Vivien, 91].

reliée à la puissance électrique fournie aux lampes. P_0 est un paramètre qui dépend des caractéristiques physiques et géométriques du matériau. Il donne l'ordre de grandeur de la puissance thermique qu'il faut dissiper dans le barreau pour qu'apparaisse le phénomène de focale thermique. Seul l'ordre de grandeur de la variation de l'indice avec la température ($\frac{dn}{dT}$) est connu pour le LNA⁽¹⁾, de même que le rapport entre la puissance électrique fournie aux lampes et la puissance absorbée effectivement dissipée sous forme de chaleur. Néanmoins, pour une puissance électrique de 2,2kW (équivalent à un courant dans les lampes $I = 10A$), ce qui correspond à une valeur expérimentale typique, le rapport P_a/P_o peut être estimé à environ 0,5 (cf. § I-3-1).

Après avoir défini la notion de zone de stabilité pour une cavité laser, nous exposerons les prévisions du modèle pour des valeurs de paramètre correspondant aux conditions expérimentales du § I-3.

I-2-1) Présentation d'une zone de stabilité

Suivant les valeurs des paramètres caractéristiques (longueur, éléments optiques, etc...), une cavité laser peut être stable ou instable. Il est commode de représenter la stabilité d'une cavité dans un diagramme où l'on fait varier en abscisse et en ordonnée deux paramètres de la cavité. Nous pouvons alors délimiter dans ce diagramme les endroits où la cavité est stable. C'est ce que nous appellerons zone de stabilité. Par exemple, dans la figure I-3a sont présentées deux zones de stabilité pour une cavité composée de deux miroirs plans et d'un barreau à faces planes. Les deux paramètres variables sont l'échauffement P_a/P_o en abscisse et la longueur d'un bras de la cavité en ordonnée. Leur gamme de variation est compatible avec nos données expérimentales. Le mode gaussien de la cavité, si elle est stable, présente un "waist" sur chaque miroir, ces derniers étant plans. Sur la figure I-3a nous observons deux zones de stabilité (A et B). A faible échauffement (zone A, $P_a/P_o < 0,1$), la cavité est stable, l'effet de lentille thermique est petit. A fort échauffement (zone C, $P_a/P_o \sim 1$), la cavité devient instable : la lentille thermique est trop importante et voudrait imposer un "waist" à l'intérieur de la cavité (de fait, même pour $P_a/P_o \sim 1$, la cavité est stable pour une longueur suffisamment courte). Les zones instables D et E, qui partagent la zone de stabilité en deux, peuvent s'expliquer par des considérations géométriques exposées dans l'appendice B.

D'autres zones stables existent pour des valeurs d'échauffement plus grandes ($P_a/P_o \sim 10, \sim 40, \dots$) qui correspondent à des modes présentant des "waists" à l'intérieur du barreau (respectivement un et deux dans les deux cas évoqués).

I-2-2) Influence du rayon de courbure des faces du barreau

Reprenons la configuration précédente en donnant cette fois un rayon de courbure aux faces du barreau ($r_c = 45,5cm$ comme pour le barreau C). Nous obtenons ainsi (figure I-3b) deux zones de stabilité identiques à celles du barreau à faces planes, mais décalées d'une valeur de l'échauffement $P_a/P_o \sim 0,2$ (P_a/P_o varie de 0 à 1 sur nos dessins). En effet, pour une valeur d'échauffement trop faible, la lentille thermique du barreau est insuffisante pour compenser la divergence due aux faces concaves. Le barreau est alors globalement équivalent à une lentille divergente, ce qui rend instable la cavité, quelle que soit la longueur de ses bras.

Ainsi, en allant à l'encontre de la lentille thermique, les faces concaves du barreau décalent en bloc les zones de stabilité de la cavité vers des échauffements plus grands. Des puissances d'excitations de plus forte valeur sont alors disponibles pour l'effet laser, ce qui n'est plus le cas pour des puissances d'excitations trop faibles. Dans ce dernier cas, même si le gain est supérieur

(1) $\frac{dn}{dT} = 9,86.10^{-6} K^{-1}$ pour le YAG et $\frac{dn}{dT} \sim 10 \sim^{-5} K^{-1}$ pour le LNA [Bagdasarov et al, 83].

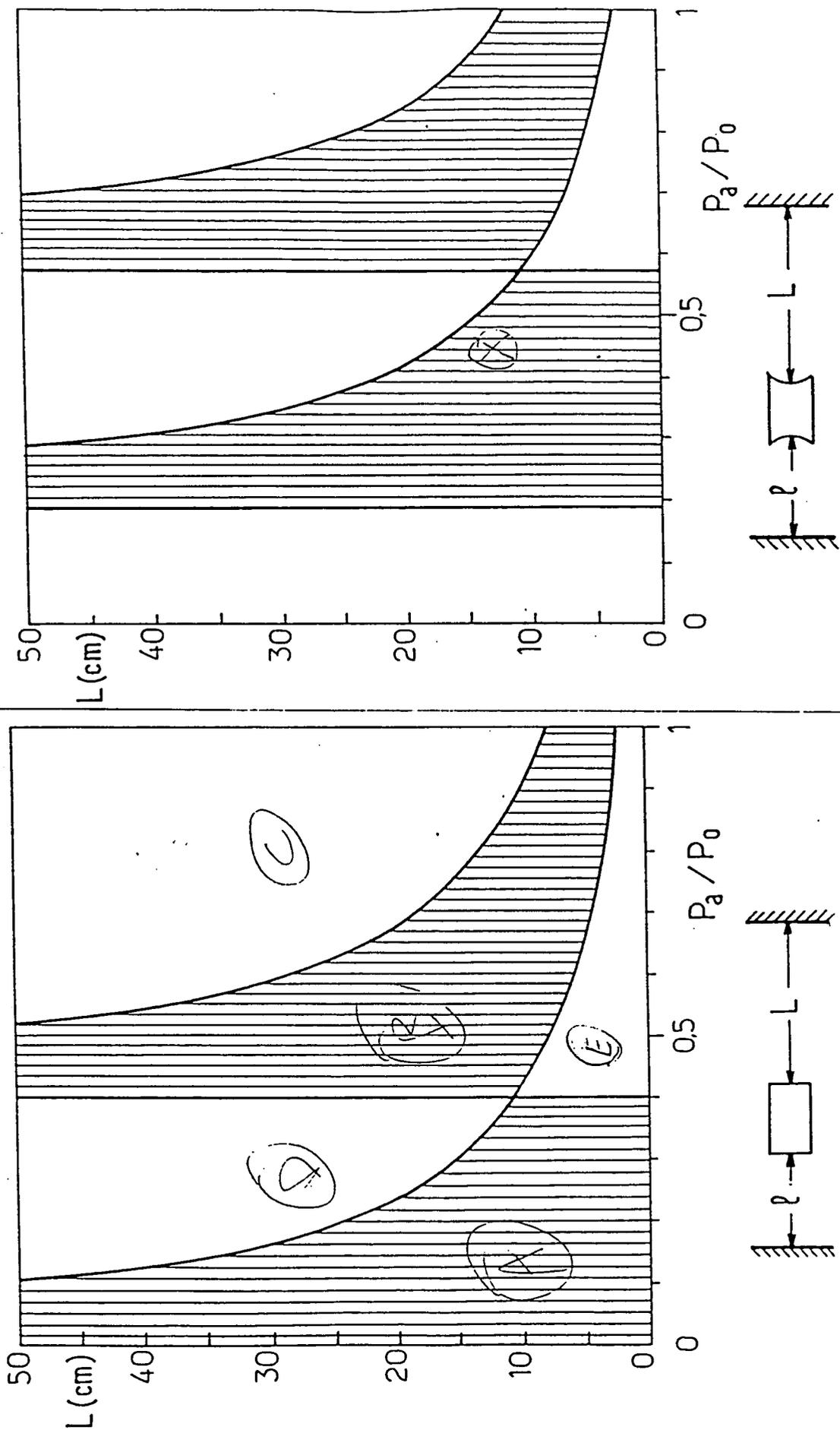


Figure I-3

Zones de stabilité d'une cavité laser formée de deux miroirs plans et d'un barreau soumis à un échauffement P_a/P_0 (en abscisse). En ordonnée, longueur L d'un des bras de la cavité, l'autre bras ayant une valeur fixe $l=12\text{cm}$ (cf. schéma). En a : barreau à faces planes ; en b : barreau à faces concaves ($r_c = 45,5\text{cm}$).

aux pertes, l'effet laser n'aura pas lieu : nous sommes en présence d'un seuil de stabilité. Ce seuil de stabilité sera d'autant plus élevé que le rayon de courbure des faces du barreau sera petit.

Pour décaler les zones de stabilité vers des puissances d'excitation plus élevée, on peut également remplacer les miroirs plans par des miroirs convexes.

I-2-3) Influence du rayon de courbure d'un miroir

Pour diminuer le seuil de stabilité minimal imposé par la concavité des faces du cristal, on peut utiliser un miroir concave (cf. figure I-4). Plus la courbure du miroir est grande, plus il compense la divergence des faces du barreau, ce qui diminue le seuil de stabilité (en terme d'échauffement : courbe (AB) de la figure I-4). La cavité peut même redevenir stable à échauffement nul (BC).

La figure I-5 présente les résultats similaires à la figure I-3 (paramètres : échauffement et longueur d'un bras de la cavité) pour différents rayons de courbure du miroir. On voit ainsi l'évolution des zones de stabilité : elles sont essentiellement déformées et déplacées vers des échauffements plus faibles. De plus apparaît une troisième zone dont l'existence s'explique par des considérations géométriques (Appendice B).

Donc, il sera à peu près toujours possible suivant les impératifs d'échauffement et d'encombrement, de choisir les paramètres pour que le point de fonctionnement désiré du laser corresponde à une cavité stable.

I-2-4) Forme du mode laser intracavité

Nous présentons la forme générale du mode laser intracavité pour les deux zones de stabilité d'une cavité contenant un barreau avec des faces concaves ($r_c = 45,5cm$) et un miroir concave également ($r_c = 50cm$). Dans tous les cas, le miroir de gauche étant plan, il impose un "waist" sur sa surface. Dans la première zone de stabilité (cf. figure I-6a), le mode laser ne présente pas d'autres "waists", la divergence due aux faces du barreau étant juste compensée par la courbure du miroir. Par contre, dans la deuxième zone de stabilité, la lentille thermique est plus forte que la divergence des faces du barreau et impose ainsi un "waist" dans la cavité (cf. figure I-6b).

Ainsi, dans la première version du laser [Aminoff et al, 89], voulant utiliser un filtre de Lyot à incidence de Brewster dans la cavité, nous avons choisi de nous placer dans la deuxième zone de stabilité et de mettre le filtre à l'endroit du "waist", pour qu'il travaille dans les meilleures conditions possibles. En utilisant deux miroirs concaves, nous pouvons imposer deux "waists" dans la cavité si nécessaire.

Lorsque l'on se rapproche du bord de la zone de stabilité, la taille du mode diverge pour devenir infinie à la limite de la zone. Il faut ainsi éviter de se placer en limite de zone de stabilité à cause des instabilités de modes très importantes pouvant survenir en cas de légère fluctuation de l'un des paramètres de la cavité.

I-3) Performances du laser LNA

Pour coupler le barreau de LNA aux deux lampes excitatrices, nous utilisons une tête laser commerciale (YAG 910 de Microcontrol). Le barreau et les deux lampes sont placés dans une enceinte diffusante réalisant une répartition la plus homogène possible de l'éclairage des lampes sur le barreau (cf. figure I-2). Barreau et lampes sont refroidis par un circuit fermé d'eau permutée. Les lampes sont remplies de krypton sous forte pression et sont fabriquées par Heraeus (n°4718).

Les résultats de cette partie ont été obtenus avec deux barreaux carotés dans une même boule réalisée par Union Carbide. Ils font 105mm de longueur et 5mm de diamètre et sont taillés selon l'axe a. Pour compenser partiellement l'effet de lentille thermique (cf § I-1), nous avons fait polir les faces des barreaux avec une forme concave, de rayon de courbure 60cm et 45,5cm (barreaux B

I-4

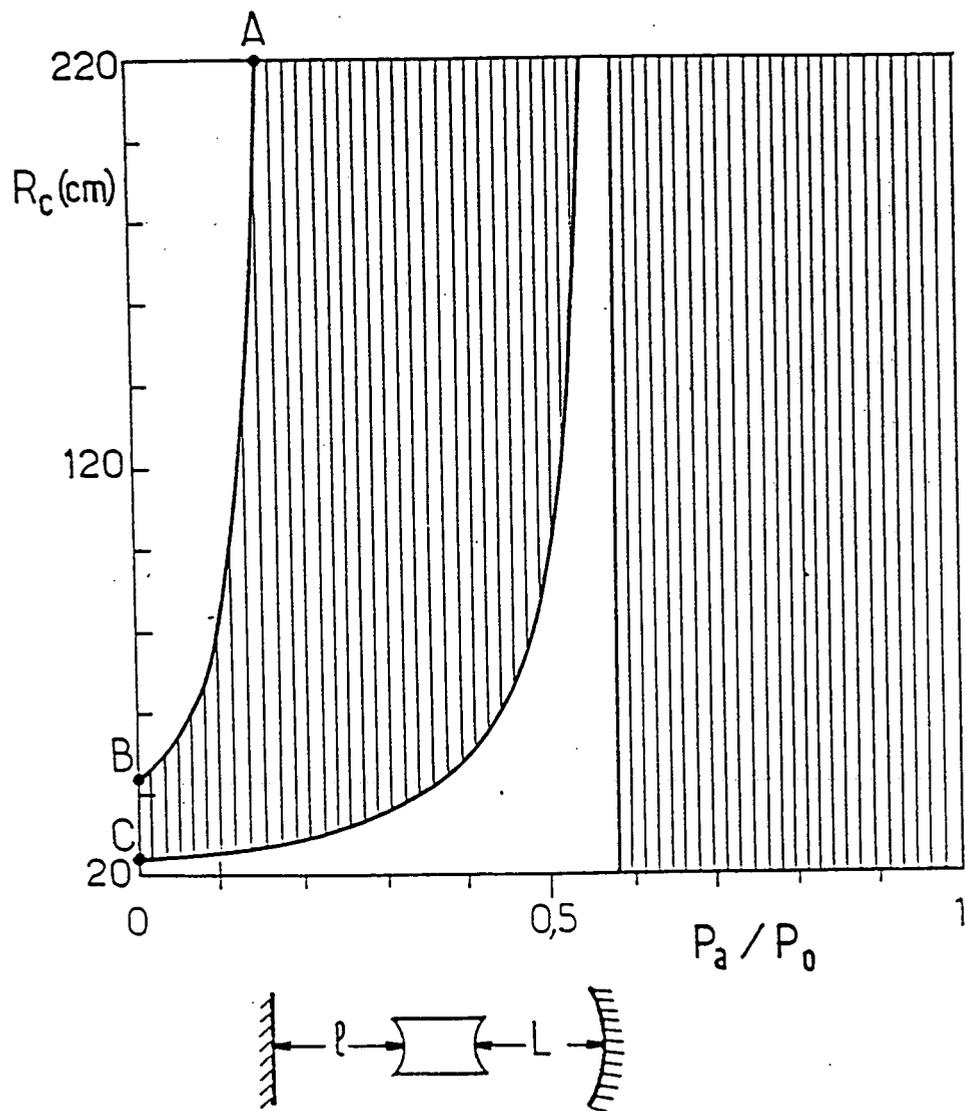


Figure I-4

Zones de stabilité d'une cavité laser comprenant un miroir plan ; un barreau à faces concaves ($r_c = 45,5\text{cm}$) soumis à un échauffement P_a/P_0 (en abscisse), et d'un miroir concave de rayon de courbure R_c variable (en ordonnée). Les deux bras de la cavité ont une longueur $L=l=12\text{cm}$.

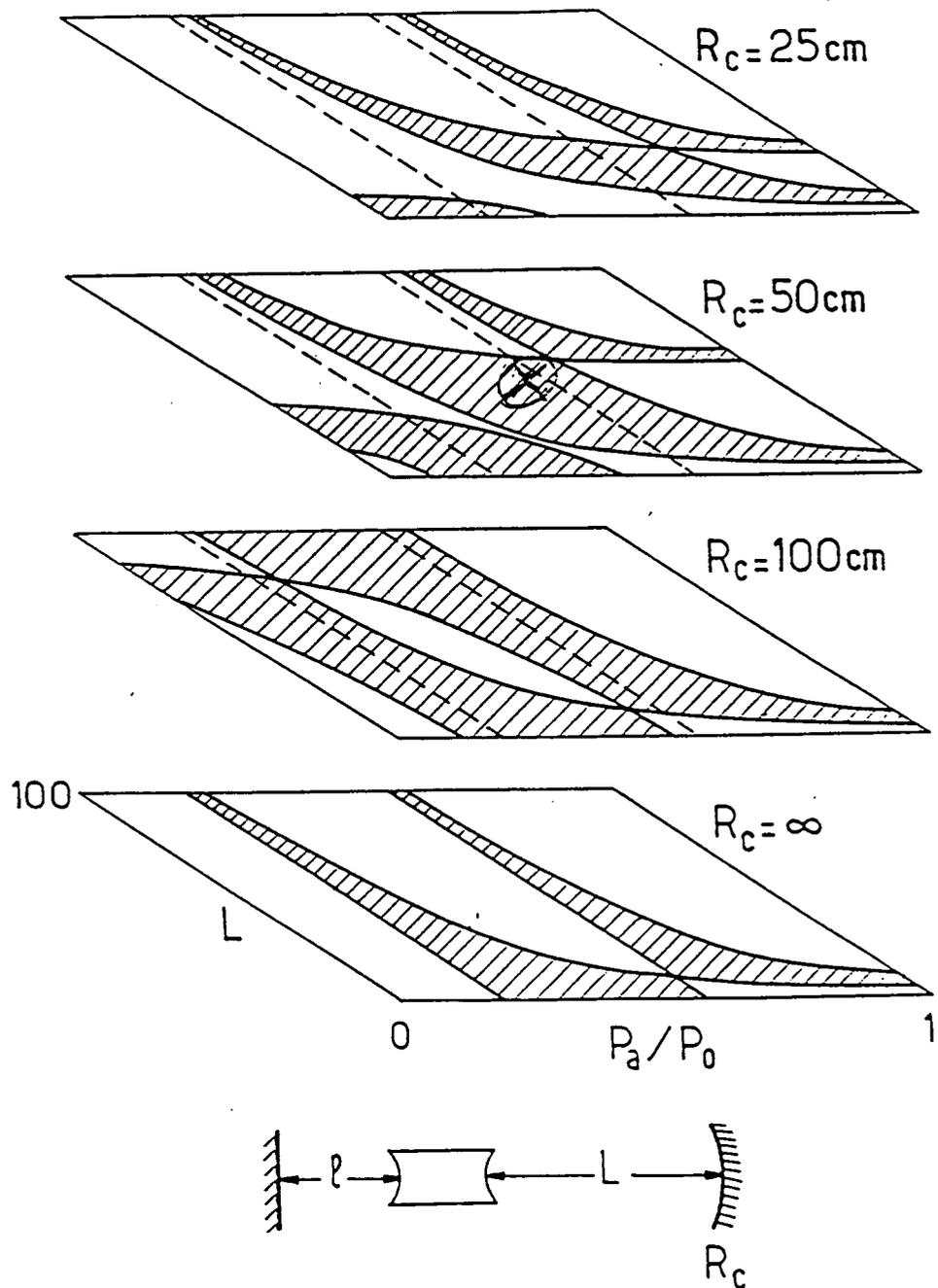


Figure I-5

Zones de stabilité d'une cavité laser dans les mêmes conditions que la figure I-3b. Le calcul est mené pour diverses valeurs du rayon de courbure R_c du deuxième miroir (cf. schéma).

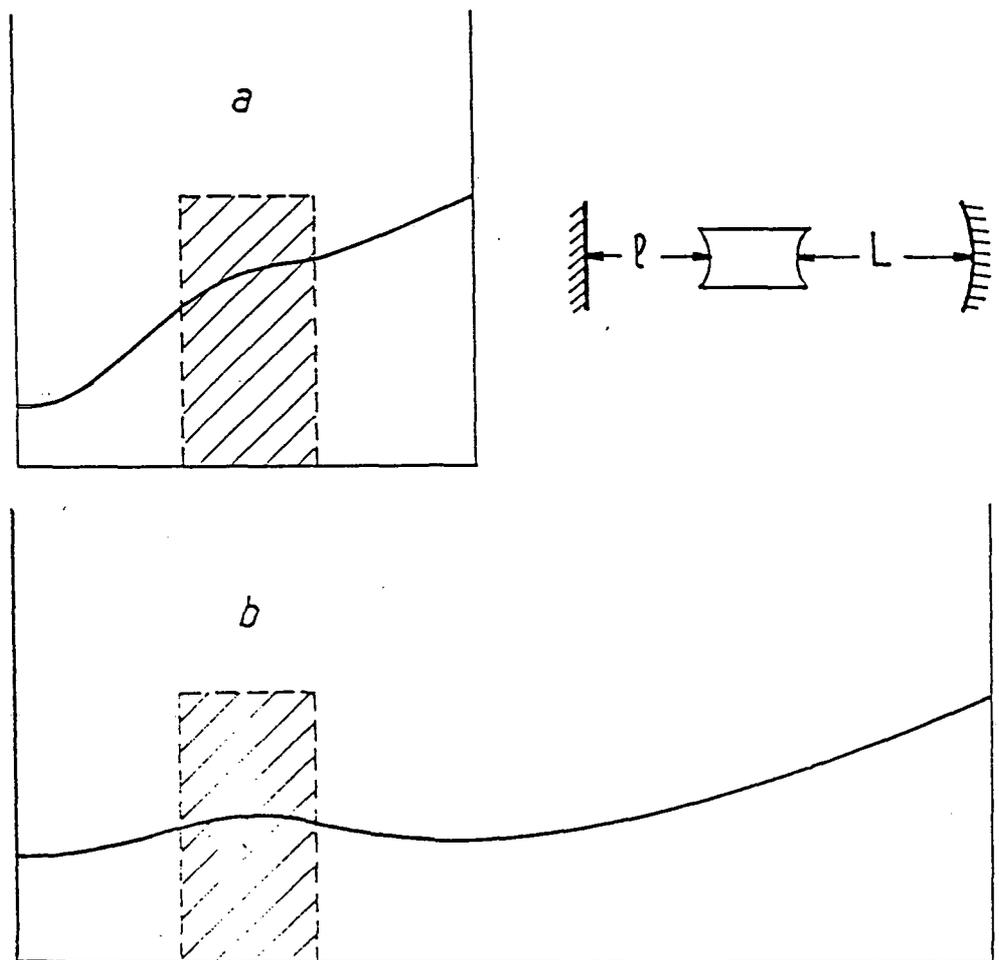


Figure I-6

Mode laser d'une cavité comprenant un miroir plan, un barreau à faces concaves ($r_c = 45,5\text{cm}$) et un miroir concave ($R_c = 50\text{cm}$). $l=12\text{cm}$. En a : cavité "courte" ($L=12\text{cm}$), première zone de stabilité. En b : cavité "longue" ($L=50\text{cm}$), deuxième zone de stabilité et présence d'un "waist" intracavité.

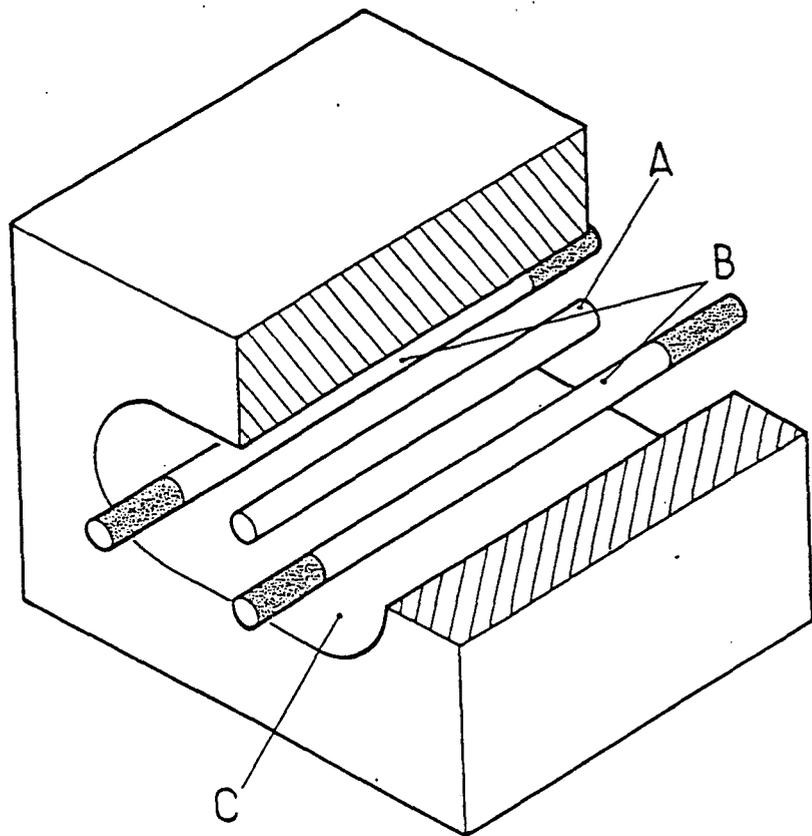


Figure I-2

Schéma de la tête laser : le barreau laser A et les deux lampes B sont placés dans une enceinte diffusante C servant à coupler le barreau aux lampes. Ces éléments sont refroidis par une circulation d'eau permutée.

et C respectivement). Ces faces ont ensuite été traitées antireflet. Le barreau B s'étant cassé à une puissance électrique de 2,5kW ($I=11A$), nous avons restreint le domaine d'utilisation du barreau C à 2,2kW électrique ($I=10A$).

I-3-1) Echauffement du barreau et focale thermique

Notre but est de déterminer l'ordre de grandeur de l'échauffement du barreau. Pour cela, nous avons mesuré la distance de focalisation d'un faisceau lumineux par le barreau et calculé l'échauffement correspondant en tenant compte des faces concaves du barreau (cf. Appendice A). Le gradient de température entre le coeur du barreau et sa périphérie en est alors déduit.

I-3-1-1) *Mesure de la distance de focalisation du barreau*

Le barreau est placé dans la tête laser et soumis à un certain échauffement par les lampes d'excitation. Un faisceau issu d'un laser ($He - Ne$) étendu et collimaté par un télescope, traverse le barreau et vient converger à une distance d de la face de sortie du barreau (cf. figure I-17). L'anisotropie du milieu impose en fait deux distances de focalisation d' et d'' . Le barreau étant orienté avec l'axe c vertical, le faisceau converge horizontalement et verticalement à des endroits différents. Or, le modèle utilisé pour calculer l'échauffement suppose un milieu isotrope. De plus, seul l'ordre de grandeur de la variation de l'indice du milieu avec la température est connu ; en particulier, la différence entre axe ordinaire et axe extraordinaire ($\frac{d}{dT}(n_o - n_e)$) n'est pas déterminée. Enfin, la localisation du point de focalisation peut être entachée d'une certaine erreur étant faite "à l'oeil". Pour toutes ces raisons, nous avons choisi de définir la distance de focalisation comme étant la moyenne arithmétique des deux distances d' et d'' . L'erreur relative sur d peut être estimée à environ 10%.

Les mesures ont été faites pour les deux barreaux de LNA (B et C) et pour plusieurs puissances d'excitation (cf. figure I-18). Comme prévu, l'effet de lentille thermique augmentant avec l'échauffement, la distance de focalisation des deux barreaux diminue pour des puissances d'excitation croissantes. A faible échauffement, le faisceau est divergent : l'effet de lentille thermique est trop faible pour compenser la divergence des faces des barreaux. Cette divergence étant plus forte pour le barreau C ($r_c = 45,5cm$) que pour le barreau B ($r_c = 60cm$), la distance de focalisation pour C est plus grande que pour B.

I-3-1-2) *Evaluation de l'échauffement*

Le calcul de la distance de focalisation pour un barreau présentant un gradient de température radial linéaire et deux faces courbes est présenté dans l'Appendice A. Dans les conditions décrites ci-dessus, le résultat se met sous la forme :

$$d = \frac{\ell}{n} \frac{b + a \operatorname{tg} b}{(b^2 - a^2) \operatorname{tg} b - 2ab} \quad (I - 1)$$

avec

$$a = \frac{n - 1}{n} \frac{\ell}{r_c} \quad (I - 2a)$$

$$b = \sqrt{\frac{P_a}{P_o}} \quad (I - 2b)$$

où n est l'indice du matériau, ℓ la longueur du barreau, r_c le rayon de courbure des faces du barreau ($r_c > 0$ pour des faces concaves). P_a/P_o , introduit au paragraphe I-2, caractérise l'échauffement

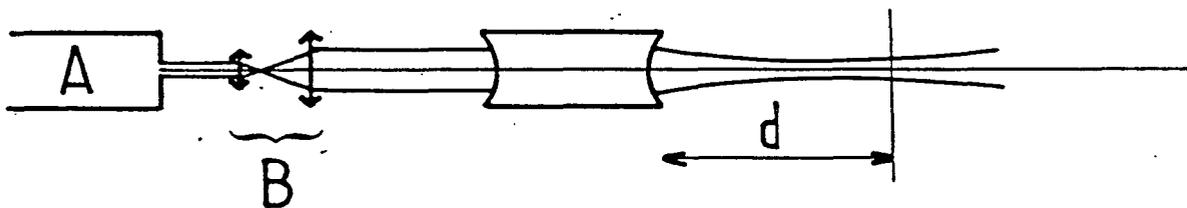


Figure I-17

Schéma de principe de la mesure de la distance de focalisation thermique d d'un barreau laser. A : laser hélium-néon. B : télescope.

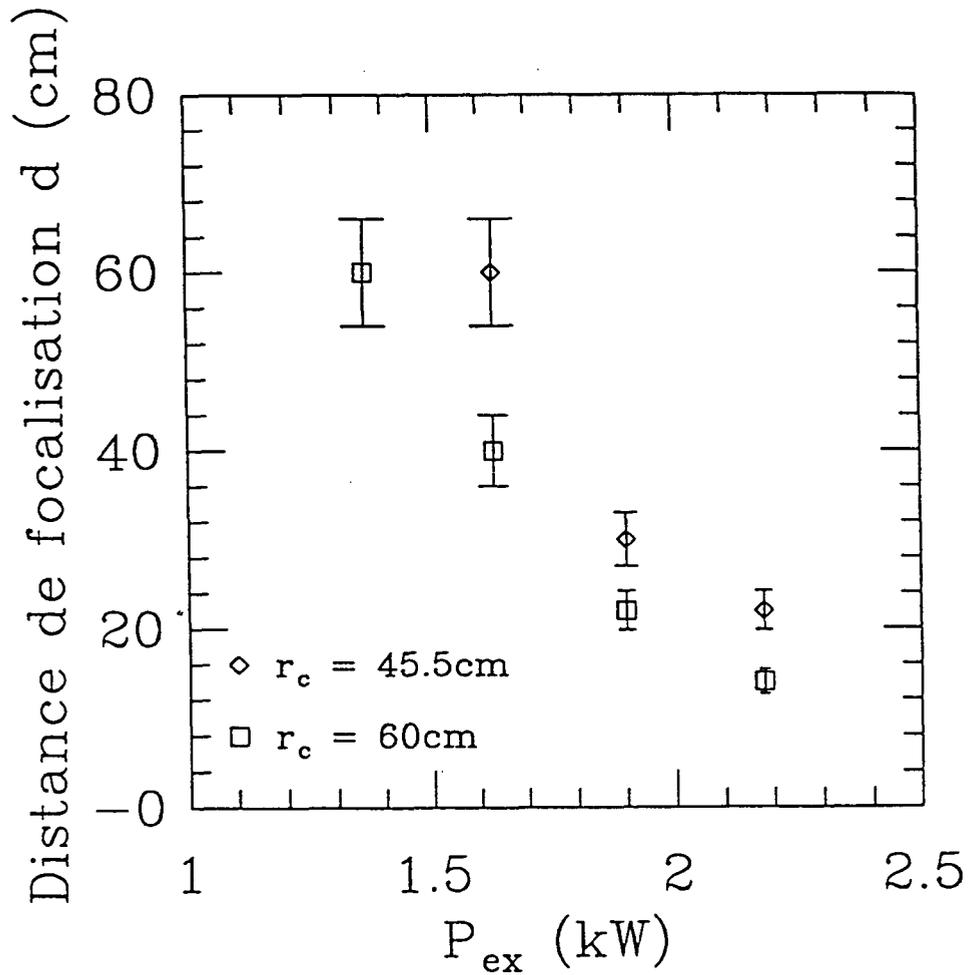


Figure I-18

Distance de focalisation thermique d (cm) pour diverses valeurs de la puissance d'excitation P_{ex} (kW). carrés : barreau B ($r_c = 60\text{cm}$) ; losanges : barreau C ($r_c = 45,5\text{cm}$).

du barreau : P_a est la puissance dissipée dans le barreau sous forme de chaleur et P_o caractérise le matériau utilisé :

$$P_o = \frac{2\pi n R^2 \kappa}{\ell \frac{dn}{dT}} \quad (I - 3)$$

avec R rayon du barreau, κ conductivité thermique du matériau et $\frac{dn}{dT}$ la variation d'indice du matériau avec la température. Pour le LNA prenant $n=1,77$, $R=0,25cm$, $\ell=10cm$, $\kappa=50mWK^{-1}cm^{-1}$ et $dn/dT \sim 10^{-5}K^{-1}$, on obtient

$$P_o \simeq 350W \quad (I - 4)$$

La distance de focalisation d est représentée sur la figure I-19 en fonction de l'échauffement P_a/P_o pour trois valeurs du rayon de courbure ($r_c = 45,5cm$, $r_c = 60cm$ et $r_c \rightarrow \infty$). Combinant les résultats des figures I-18 et I-19 on obtient la valeur de l'échauffement P_a pour chaque barreau suivant la valeur de la puissance d'excitation (cf. figure I-20). Les résultats sont très similaires pour les deux barreaux, ce qui prouve que l'approximation du paragraphe précédent (distance de focalisation moyenne) est suffisante pour déterminer l'échauffement des barreaux. Ces résultats sont sensiblement alignés. De fait, cela revient simplement à dire que la puissance absorbée par le barreau est proportionnelle à la puissance électrique fournie aux lampes. A échauffement nul, la puissance électrique non-nulle correspond à la puissance seuil de fonctionnement des lampes. Pour une puissance d'excitation de $2,2kW$ ($I=10A$), on trouve une puissance dissipée sous forme de chaleur dans le barreau (P_a) de $160W$ (7% de la puissance électrique), imposant une différence de température entre le centre du barreau et son bord $\Delta T = 25^\circ C$, d'après la relation :

$$\Delta T = \frac{P_a}{4\pi \kappa \ell} \quad (I - 5)$$

On peut comparer cette valeur d'échauffement P_a avec celle du YAG également en pompage continu par deux lampes au krypton [Koechner, 70]. De fait, il est plus pertinent de comparer l'échauffement par unité de volume pour ces deux matériaux. Pour une puissance d'excitation de $2,2kW$, la puissance dissipée dans un barreau de YAG de $7,5cm$ de long et $6,35mm$ de diamètre est de $100W$ [Koechner, 70]. On trouve ainsi un échauffement de $10W/cm^3$ pour le YAG et $20W/cm^3$ pour le LNA. L'échauffement dans ces deux matériaux est donc du même ordre de grandeur et semble plus important pour le LNA. Une comparaison plus précise exigerait d'utiliser la même tête laser, les mêmes lampes et la même taille pour les deux matériaux. Ici, les caractéristiques des lampes peuvent être différentes (entraînant une différence dans le rapport puissance électrique fournie/puissance lumineuse délivrée). De même, le couplage lampes/barreau a été réalisé par une double cavité elliptique pour le YAG:Nd alors que notre tête laser utilise un milieu dispersif. Enfin, LNA et YAG ont des bandes d'absorptions décalées d'une dizaine de nanomètres et de largeurs différentes imposant une efficacité de couplage avec le spectre des lampes différente.

I-3-2) Seuil de l'effet laser, zones de stabilité et évaluation des pertes

En nous servant des remarques du paragraphe I-2, nous allons évaluer les pertes du barreau laser en utilisant diverses cavités. Nous mettrons également en évidence la présence de deux zones de stabilité. Nous pourrions alors présenter notre choix final.

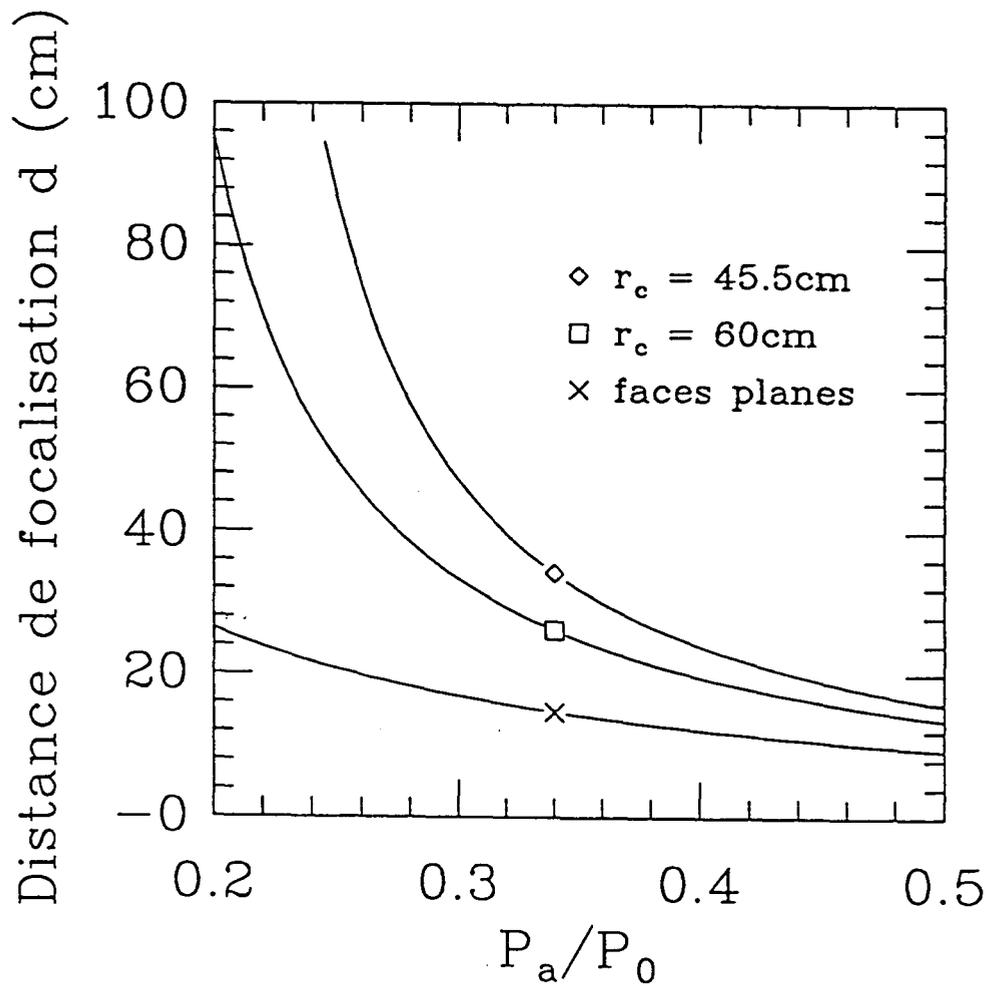


Figure I-19

Distance de focalisation d (cm) d'un barreau en fonction de l'échauffement P_a/P_0 pour trois valeurs de la courbure des faces.

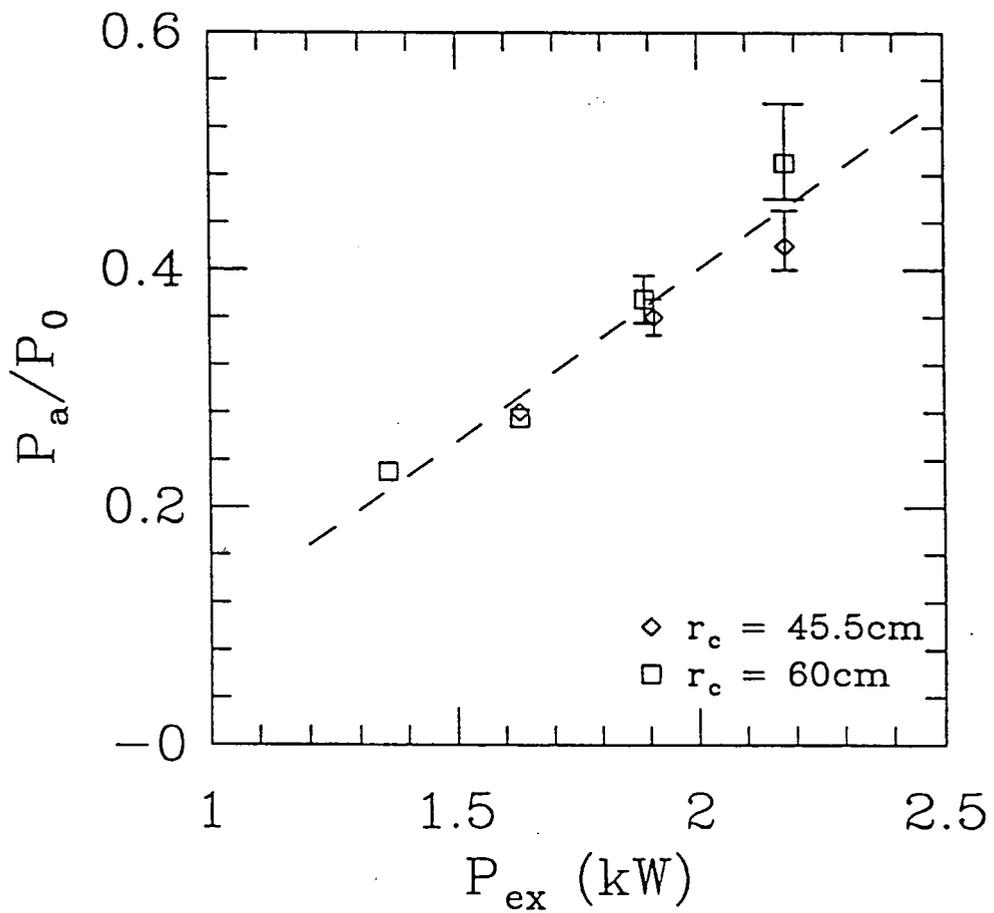


Figure I-20

Echauffement P_a/P_0 des barreaux B (carrés) et C (losanges) pour diverses valeurs de la puissance d'excitation P_{ex} (kW).

Nous avons étudié des cavités dont l'un des deux miroirs était toujours le même (plan, coefficient de transmission $\sim 10^{-4}$) systématiquement placé à environ 12cm de la face du barreau laissant ainsi un espace libre de 2cm entre le miroir et la tête laser pour insérer un éventuel élément sélectif (tel qu'un étalon solide). Les deux barreaux testés ont des rayons de courbures de 60cm (barreau *B*) et 45,5cm (barreau *C*).

I-3-2-1) Seuil, évaluation des pertes et première zone de stabilité

On peut évaluer les pertes intrinsèques du barreau (pertes en volume et par réflexion sur les faces) en traçant la courbe "seuil de l'effet laser" en fonction des "pertes imposées à la cavité" (coefficient de transmission du miroir de sortie du laser). Si on suppose que le seuil, repéré par la puissance électrique fournie aux lampes, est proportionnel au gain du milieu, cette courbe est une droite. Si le milieu laser n'a pas de pertes intrinsèques, cette droite passe par l'origine. Par contre, quand le milieu laser a des pertes, la droite passe, pour une valeur du seuil nulle, par un point de "transmission négative". En valeur absolue, cette transmission correspond aux pertes produites par le barreau lors de l'aller-retour de l'onde laser dans la cavité. Les pertes intrinsèques par passage sont donc égales à la moitié de la valeur à seuil nul. De fait, cette description n'est valable que si le seuil observé est imposé par les pertes de la cavité et non pas pour une raison géométrique (cavité hors zone de stabilité). Pour s'en assurer, il faut pouvoir déplacer la zone de stabilité sans rien changer d'autre part ailleurs, par exemple en changeant le rayon de courbure d'un des miroirs de la cavité.

Nous avons utilisé comme miroir de sortie dans la cavité dite "courte" (symétrique, 34cm de long) trois miroirs plans de transmission 1%, 2% et 4% pour chacun des deux barreaux de LMA (*B* et *C*). Les résultats "puissance laser" fonction de "puissance de pompe dans les lampes" sont portés sur la figure I-7. Nous n'avons pas réussi à faire fonctionner le laser avec le barreau *B* et un miroir de sortie de 4% de transmission. De plus, il s'est cassé à la puissance de pompe de 2,5kW ($I=11A$), ce qui explique que l'excursion en puissance de pompe du barreau *C* a été limitée à 2,2kW ($I=10A$).

Cette cavité correspond à la droite AA' de la figure I-3b. De fait, elle est instable à faible valeur d'échauffement. Pour abaisser le seuil de stabilité, nous avons remplacé le miroir de sortie plan par un miroir concave de transmission 1% (cf. figure I-4). Nous constatons (figure I-9a) que le seuil de l'effet laser pour le barreau *B* ($r_c = 60cm$) n'est pas modifié. On peut ainsi affirmer que le seuil mesuré n'est pas dû à un seuil de stabilité et est donc imposé par les pertes du barreau. La situation est totalement différente pour le barreau *C* ($r_c = 45,5cm$) : la puissance de pompe seuil passe de 1,5kW ($I=7,6A$) pour le miroir plan à 1,3kW ($I=6,7A$) pour un miroir de rayon de courbure de 100cm (cf. figure I-9b). Clairement, le seuil mesuré pour un miroir plan ($T=1\%$) est dû à l'instabilité de la cavité, la valeur réelle étant inférieure ou égale à celle de la cavité avec le miroir le plus concave.

Nous avons donc porté sur la figure I-8 le seuil de l'effet laser (en terme de puissance de pompe) en fonction du coefficient de transmission des miroirs pour les deux barreaux (*B* : croix ; *C* : cercles). La valeur du seuil pour une transmission de 0,5% provient de la figure I-10 (cavité courte, miroir de rayon de courbure de 50cm). Tous ces points s'alignent à peu près. La dispersion des résultats est essentiellement due à l'incertitude sur la valeur de la transmission des miroirs annoncées par le fabricant (nous n'avons pas cherché à les mesurer précisément). Néanmoins, on peut estimer à environ 1,5% par passage les pertes induites par le barreau.

Nous pouvons aussi remarquer que la puissance laser pour le barreau *B* avec le miroir le plus concave (figure I-9a) diminue pour une puissance de pompe supérieure à 2,5kW ($I=11A$), alors que nous n'observons aucune diminution de puissance laser avec des miroirs moins convergents ou avec le barreau *C* (figure I-9b). De fait, la combinaison du barreau *B* ($r_c = 60cm$) et du miroir le plus

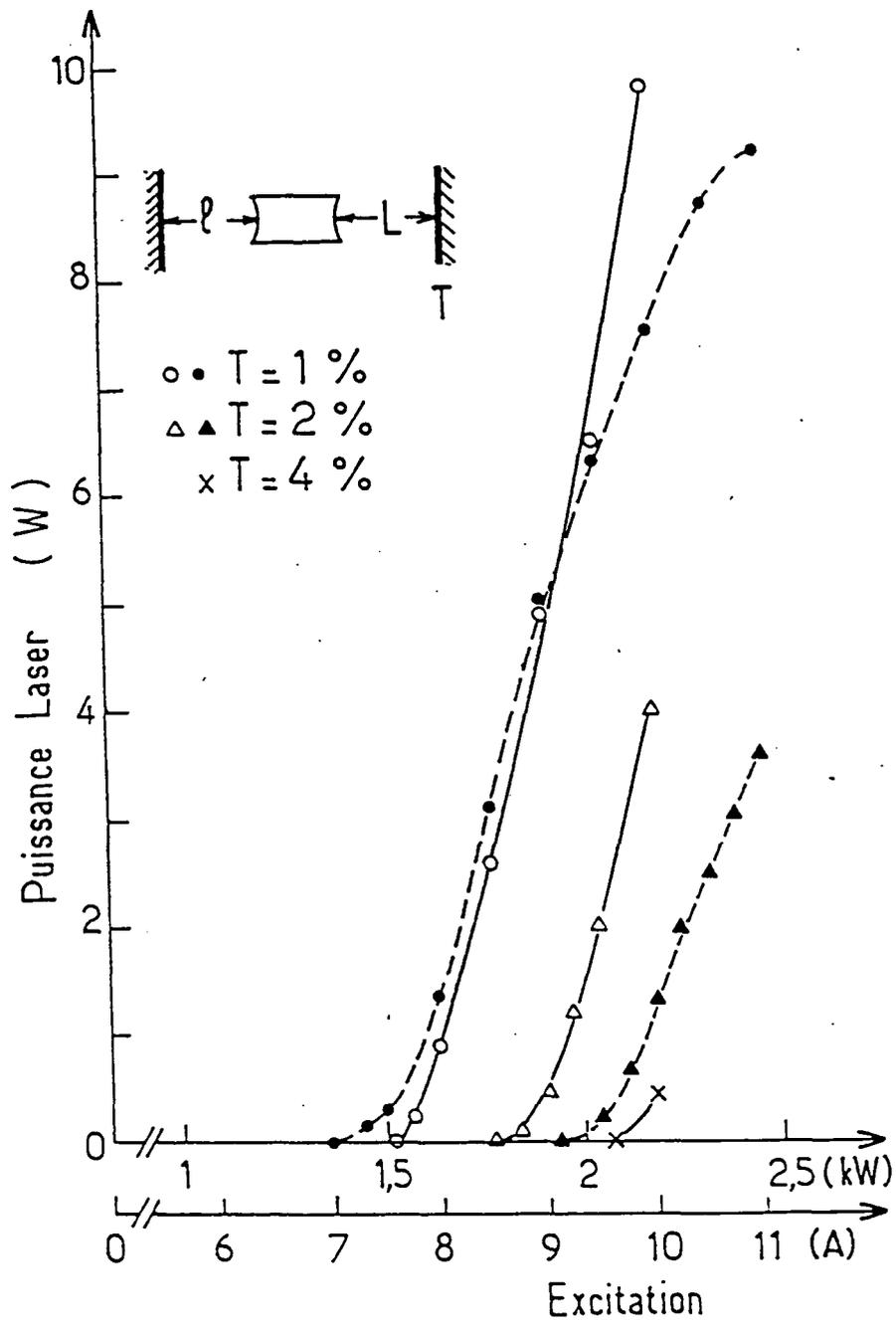


Figure I-7

Puissance laser en fonction de l'excitation (puissance électrique fournie aux lampes (en kW) ou courant traversant ces lampes (en A)). Cavité "courte" ($L \sim l \sim 12\text{cm}$) composée d'un miroir plan de transmission négligeable et d'un deuxième miroir plan de transmission T . En trait plein : barreau C ($r_c = 45,5\text{cm}$). En pointillés : barreau B ($r_c = 60\text{cm}$).

I-9a

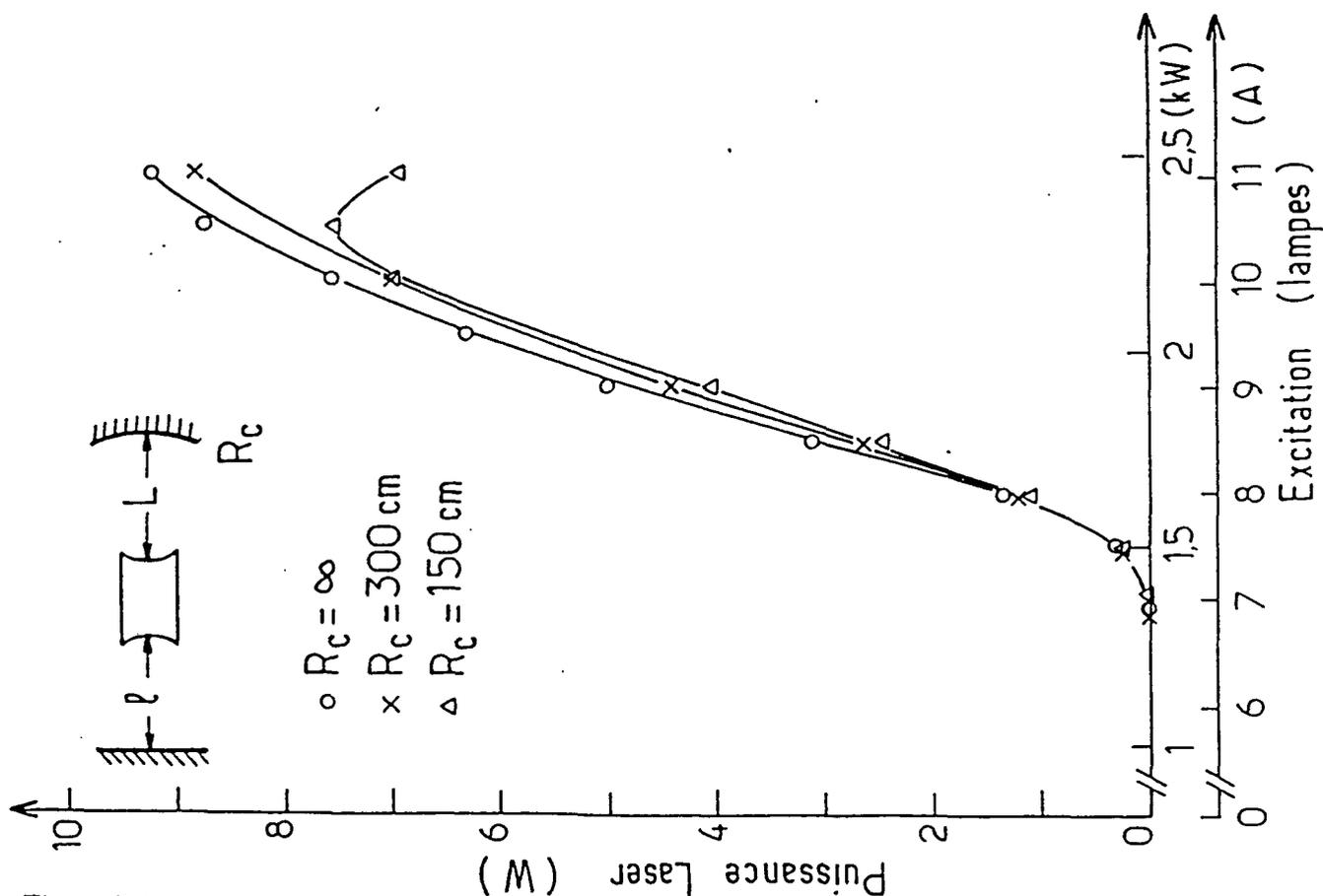
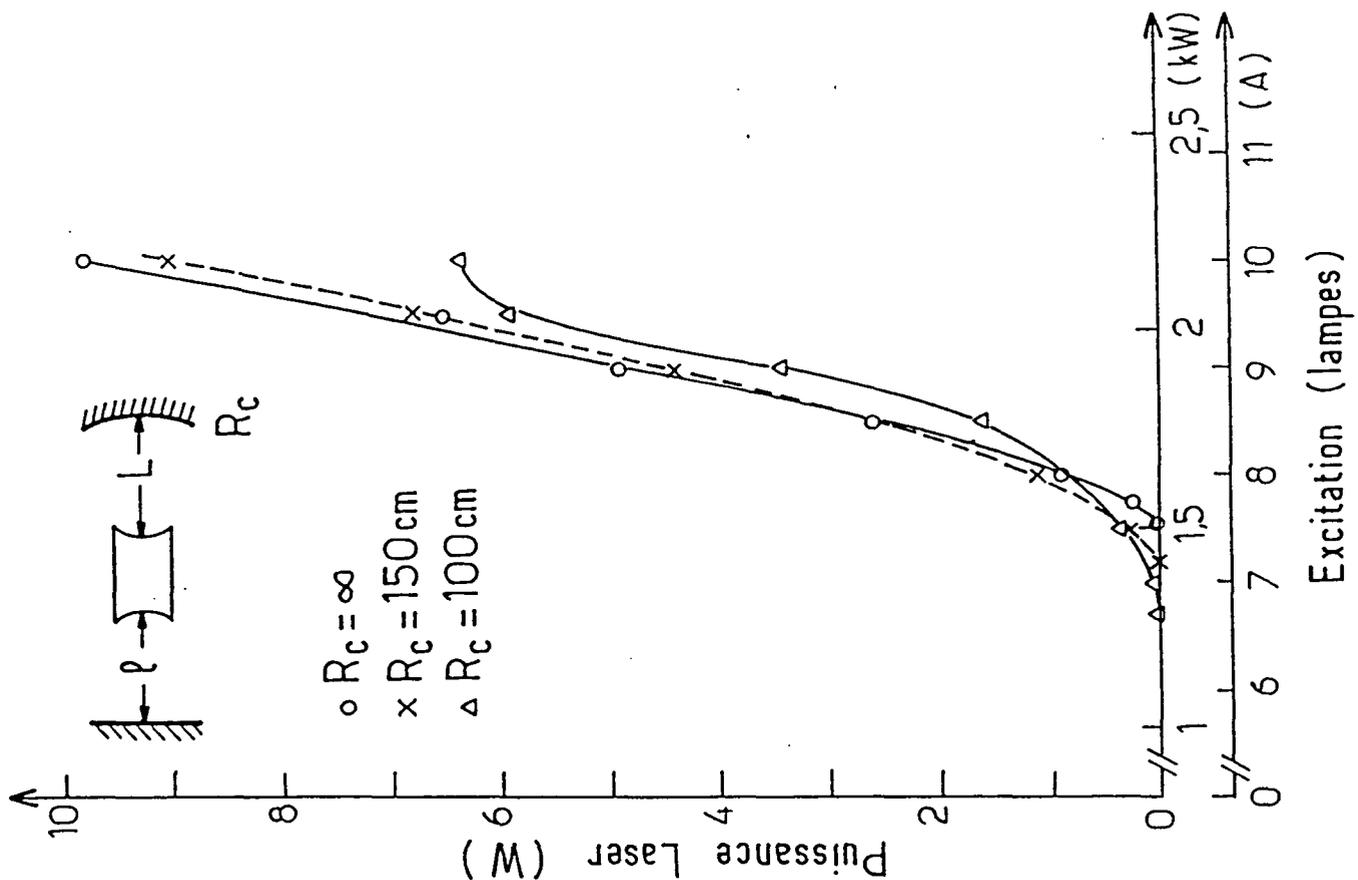


Figure I-9

Puissance laser en fonction de l'excitation (cf. figure I-7). Cavité "courte" ($L \sim \ell \sim 12 \text{ cm}$) composée d'un miroir plan de transmission négligeable et d'un miroir de transmission 1% et de rayon de courbure R_c . En a : barreau B ($\tau_c = 60 \text{ cm}$). En b : barreau C ($\tau_c = 45,5 \text{ cm}$).

I-5

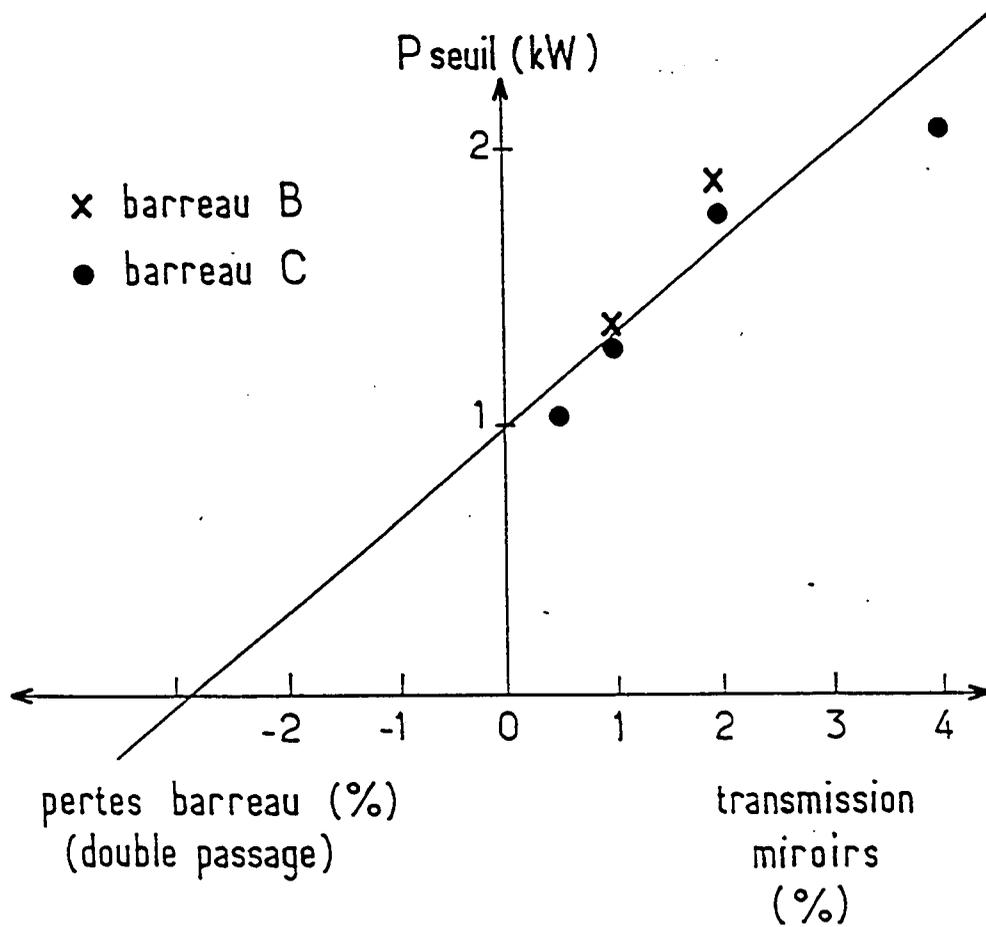


Figure I-8

Puissance électrique fournie aux lampes au seuil de l'effet laser pour diverses valeurs du coefficient de transmission du miroir de sortie. Croix : barreau B ($r_c = 60\text{cm}$) ; cercles : barreau C ($r_c = 45,5\text{cm}$).

convergent impose à la zone de stabilité d'être la plus décalée vers les faibles puissances de pompe de toutes les combinaisons évoquées ci-dessus. Cette combinaison présente ainsi le seuil de stabilité le plus bas, ce qui est intéressant pour déterminer le seuil de l'effet laser. Elle correspond aussi à une limite supérieure de zone de stabilité la plus basse de toutes ces configurations (cf. figure I-4). Ainsi, la diminution du rendement laser à forte puissance est liée à la proximité de la limite de la zone de stabilité. Nous n'avons pas voulu augmenter la puissance de pompe pour vérifier que la puissance laser devenait nulle par crainte de casser le barreau. Par contre, nous avons observé ce phénomène avec une autre configuration de cavité.

I-3-2-2) Première et deuxième zone de stabilité

Nous avons fait varier la longueur du bras de la cavité contenant un miroir concave de rayon de courbure 50cm (cf. figure I-5) et de coefficient de transmission 0,5%. La figure I-10 présente la puissance laser obtenue pour deux tailles de cavité : la cavité courte précédente (longueur du bras 12cm) et une cavité dite longue (longueur du bras 50cm). Pour une position intermédiaire du miroir (environ 30cm), la cavité ne donne pas lieu à un effet laser. Les seuils sont totalement différents : pour la cavité courte, il est dû aux pertes intrinsèques du barreau (cf. paragraphe précédent), alors que pour la cavité longue, il est imposé par la zone de stabilité de la cavité. Nous constatons que, à la puissance de pompe maximale que nous nous sommes permise, il n'y a pas une grande différence en terme de puissance laser obtenue entre ces deux cavités. Il en irait tout autrement si cette limite pouvait être dépassée. En effet, une puissance de pompe de 2,2kW ($I=10A$) correspond à-peu-près à l'optimum en terme de puissance laser pour la cavité courte (la saturation qui apparaît indique que la cavité approche de la limite supérieure de sa zone de stabilité). Par contre, la cavité longue a potentiellement devant elle une plage de stabilité beaucoup plus grande. On peut ainsi s'attendre à des puissances laser nettement supérieures à 10W si des barreaux plus résistants aux contraintes thermiques sont développés.

I-3-2-3) Conclusion

En conclusion, le choix de la cavité résulte de plusieurs contraintes. La première est la puissance à laquelle va fonctionner le laser. Dans notre cas, elle est imposée par le seuil de rupture du barreau et non par les possibilités des lampes (nous fonctionnons à 50% de leurs capacités). Une autre contrainte est la nécessité de laisser assez d'espace libre dans la cavité pour pouvoir y insérer des éléments sélectifs plus ou moins encombrants. De même, il peut être nécessaire d'avoir un ou deux "waits" dans la cavité pour que ces éléments sélectifs opèrent dans de bonnes conditions. Pour réaliser ce dernier point, il faut utiliser une cavité suffisamment longue avec des miroirs concaves.

La configuration de cavité délivrant le plus de puissance (10W) dans nos conditions est celle correspondant à une cavité la plus courte possible avec deux miroirs plans (un totalement réfléchissant, l'autre de 1% de transmission. L'émission laser est multimode transverse avec une divergence assez grande : $2\theta \sim 10\text{mrad}$ (θ = demi-angle au sommet).

I-3-3) Affinement et accord accord spectral

Le néodyme présente dans le LNA, pour sa transition ${}^4F_{3/2} \rightarrow {}^4I_{11/2}$, trois bandes d'émission centrées sur 1,05 μm , 1,06 μm et 1,08 μm . Ces bandes sont très élargies car le néodyme peut occuper trois sites différents dans la matrice correspondant à des champs cristallins différents. Le LNA est ainsi accordable continûment de 1,046 μm à 1,090 μm en pompage longitudinal par diode laser continue [Aubert et al, 89]. Pour notre part, nous avons observé l'émission laser uniquement autour de 1,05 μm et 1,08 μm en pompage continu par lampes [Aminoff et al, 89].

Sans éléments sélectifs internes, le laser décrit au § I-1-2 émet à 1,08 μm et parfois simultanément sur 1,05 μm suivant le miroir de sortie utilisé (nos miroirs, d'origines diverses, ont des

I-10

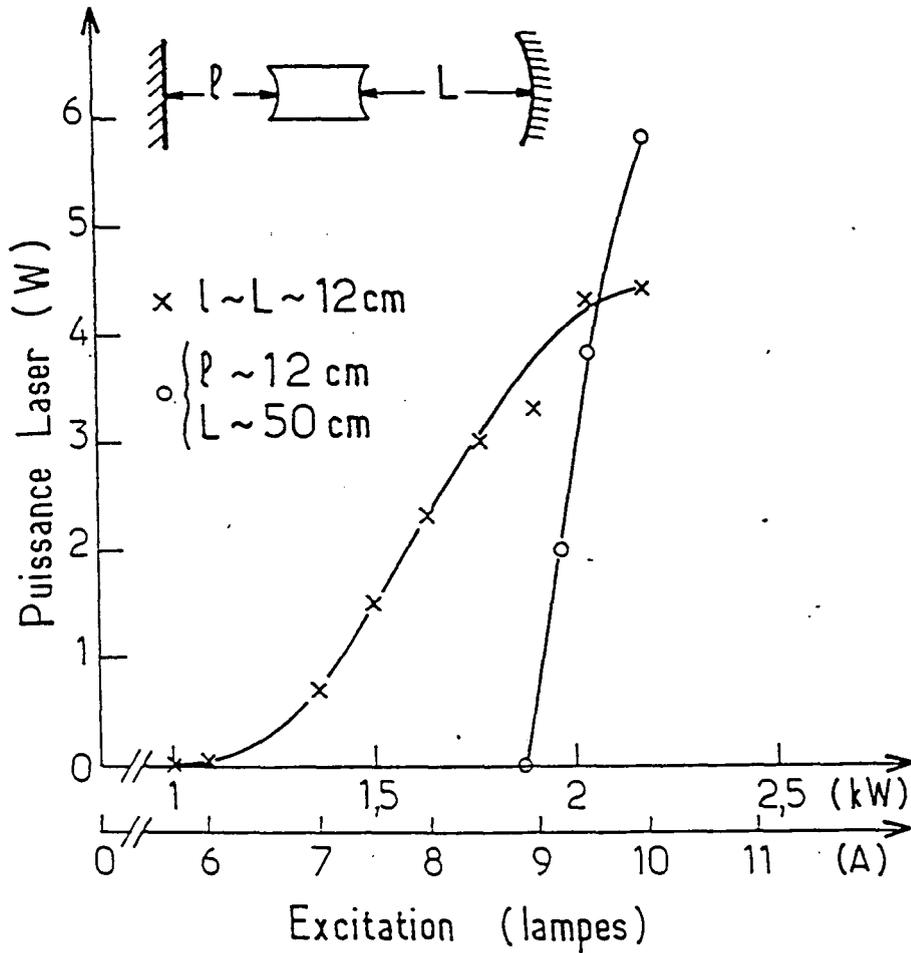


Figure I-10

Puissance laser en fonction de l'excitation (cf. figure I-7). Cavité composée d'un miroir plan de transmission négligeable et d'un miroir concave ($R_c = 50\text{cm}$) de transmission 0,5%. Comparaison de la cavité "courte" (croix) et de la cavité "longue" (cercles).

traitements réfléchissants variés). La largeur spectrale dans ces conditions (à $1,08\mu m$) est d'environ $100GHz$ ($0,3nm$). Elle a été évaluée avec un spectromètre Jobin Yvon *HRS2* de résolution $0,1nm$. L'émission laser est polarisée linéairement suivant l'axe a^* (cf figure I-1). Si le barreau avait été taillé suivant l'axe c , l'émission laser n'aurait eu aucune raison d'être spontanément polarisée, le barreau étant alors de symétrie de révolution autour de son axe. Remarquons que, notre but particulier étant le pompage optique de l'hélium, nous avons besoin d'un laser polarisé. Le fait qu'il le soit spontanément nous dispense donc d'introduire dans la cavité un élément sélectif en polarisation.

Notre but est d'obtenir un faisceau polarisé linéairement, accordable sur les raies de l'hélium, avec une largeur de l'ordre de grandeur de la largeur Doppler de l'hélium-3 à température ambiante (cf. partie Préliminaire). Pour accorder le laser en fréquence sur une raie de l'hélium, nous détectons la fluorescence induite dans une cellule contenant de l'hélium ⁽¹⁾ par le faisceau sortant par l'arrière du laser (cf. figure I-11). Le faisceau traverse également un analyseur de modes (Fabry-Perot plan d'épaisseur variable de chez Burleigh, réglé pour avoir un intervalle spectral libre de $15GHz$). Nous allons maintenant décrire la procédure d'affinement et d'accord du laser en prenant l'exemple d'une raie de l'hélium-3.

I-3-3-1) Affinement et accord avec deux étalons solides

Pour réduire la largeur spectrale du laser à la valeur souhaitée, plusieurs choix sont possibles : filtre biréfringent (filtre de Lyot), interféromètres de Michelson ou de Fabry-Perot, prisme ou réseau (dispersion angulaire fonction de la longueur d'onde). La première version du laser comportait deux éléments sélectifs : un filtre de Lyot de $2mm$ et un étalon en silice de $0,7mm$, ce qui donnait une largeur spectrale d'environ $1,5GHz$ [Aminoff et al, 89]. Nous avons remplacé le filtre de Lyot par un étalon solide de $0,25mm$ car c'est plus simple à régler et demande moins de place dans la cavité (le Lyot doit être mis à incidence de Brewster). Nous utilisons ainsi, pour l'affinement et l'accord spectral, deux étalons solides non traités en silice de très bonne qualité optique ($0,25mm$ et $1mm$ d'épaisseur). L'effet Fabry-Perot des étalons, malgré le faible coefficient de réflexion de leurs faces ($\sim 4\%$), est suffisant pour affiner la raie. L'accord en fréquence est obtenu en inclinant plus ou moins l'étalon par rapport à l'incidence normale : un angle plus grand correspond à une diminution de la différence de chemin optique ΔL entre deux rayons successifs sortant du Fabry-Perot, d'où un déplacement de la fréquence d'accord vers des fréquences plus élevées :

$$\Delta L = 2ne \cos r \quad (I - 6)$$

où n est l'indice de réfraction de l'étalon, e son épaisseur et r l'angle de réfraction des faisceaux lumineux dans l'étalon.

On insère en premier dans la cavité l'étalon mince (plus un étalon est mince, plus la largeur de ses pics de transmission est grande). Une fois l'étalon incliné légèrement, la largeur spectrale du laser est d'environ $10GHz$ (estimée à l'analyseur de mode). De fait, en inclinant plus ou moins l'étalon, on balaye le laser sur toute la structure de l'hélium-3 : on résoud ainsi très bien le premier groupe de raies (C_1 à C_7) du deuxième (C_8 à C_9). On règle alors le laser sur le deuxième groupe, le pompage optique de l'hélium-3 s'effectuant généralement sur la raie C_8 ou la raie C_9 . L'insertion de l'étalon épais ($1mm$) affine alors la raie à une largeur d'environ $1,5GHz$. Cette largeur, estimée avec l'analyseur de mode, est confirmée par le fait que les raies de fluorescence C_8 et C_9 sont très

⁽¹⁾ Les atomes d'hélium métastables sont créés par une décharge radiofréquence ($\sim 8MHz$) peu intense. On choisit une cellule d'hélium-3 pur ou d'hélium-4 pur suivant l'isotope sur lequel est effectué le pompage optique.

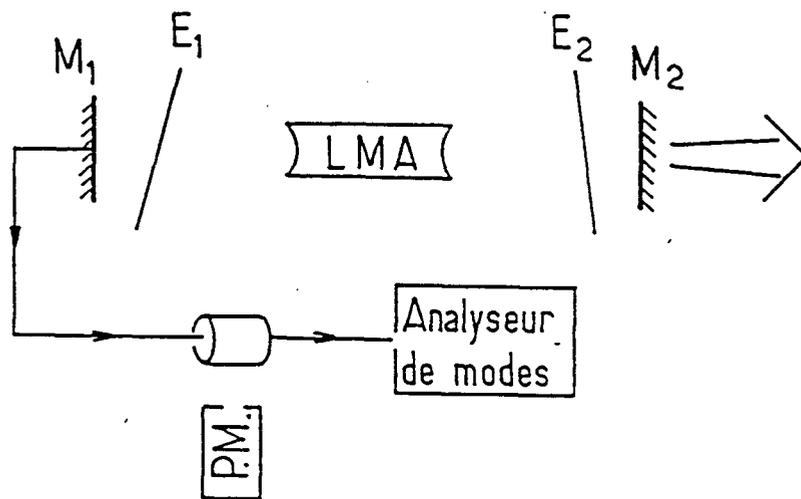


Figure I-11

Schéma de principe du laser et de la ligne de détection de la fluorescence de l'hélium et de l'analyse de mode. E_1 et E_2 : étalons solides servant à l'affinement spectral.

nettement résolues (figure I-12) : supposant une distribution spectrale gaussienne de l'énergie du laser, la largeur expérimentale de fluorescence des atomes d'hélium-3 $D_{\text{exp}} = 1,9\text{GHz}$ est reliée à la largeur du laser D_{las} et à la largeur Doppler d'absorption des atomes $D_{\text{dop}} = 1,2\text{GHz}$ par la relation $D_{\text{exp}}^2 = D_{\text{las}}^2 + D_{\text{dop}}^2$, d'où $D_{\text{las}} = 1,5\text{GHz}$. Nous avons ainsi obtenu une puissance laser de $2W$ sur C_8 , créant une polarisation nucléaire de l'hélium-3 d'environ 80%. Ce laser ne nécessite aucun asservissement particulier : une demi-heure après la mise en marche du laser, il atteint un régime stable ne dépendant que des variations de température de la pièce où il se trouve. Une simple vérification périodique, consistant à retoucher un peu l'inclinaison de l'étalon épais, suffit ainsi largement à conserver le laser accordé sur la raie désirée.

I-3-3-2) Diminution des pertes de puissance par chauffage des étalons

L'inclinaison des étalons pour l'accord en fréquence introduit une baisse de la puissance de sortie qui peut être très importante. Cette chute de puissance est principalement due à l'extinction de certains modes transverses. En effet, ayant au départ un faisceau bien rond (étalons enlevés ou réglés à incidence normale), l'inclinaison des étalons autour d'un axe vertical (par exemple) éteint les modes transverses du laser se trouvant sur un axe horizontal (cf. figure I-13). On obtient ainsi un mode laser allongé verticalement. Cet effet est plus important avec l'étalon épais qu'avec l'étalon mince.

La puissance laser obtenue sur une raie de l'hélium dépend de façon très critique de l'épaisseur exacte de l'étalon épais. En effet, l'intervalle spectral libre de l'étalon épais est de 100GHz . Faire varier la différence de chemin optique ΔL (formule I-6) de la valeur d'une longueur d'onde ($\lambda \sim 1\mu\text{m}$) déplace les modes de l'étalon de la valeur de l'intervalle spectral libre. De fait, pour balayer les modes de l'étalon sur 100GHz , il faut l'incliner de $1,5^\circ$ (26mrad), ce qui cause une forte baisse de puissance due à l'extinction de multiples modes transverses. Aussi, suivant la position relative des modes de l'étalon par rapport à la raie de l'hélium désirée (cf. figure I-14), il faudra l'incliner plus ou moins pour amener en coïncidence le mode de l'étalon avec la raie de l'hélium. Donc, suivant l'épaisseur exacte de l'étalon épais, la puissance laser sur les différentes raies de l'hélium varie d'un facteur pouvant aller jusqu'à 3. De plus, les étalons d'une même série présentent une dispersion en épaisseur importante alors que leur planéité est définie à mieux que $\frac{\lambda}{10}$. On pourrait ainsi essayer un grand nombre d'étalons et choisir pour chaque raie de l'hélium souhaitée celui qui délivre le plus de puissance, c'est-à-dire celui que l'on incline le moins pour cette raie.

Cette solution est limitée par le nombre d'étalons que l'on est décidé à acheter et par un autre phénomène : l'échauffement de l'étalon dû à la fraction de la puissance lumineuse qu'il absorbe (moins de 0,01% de la puissance lumineuse pour un étalon de 1mm). En effet, cet échauffement induit une variation de la différence de marche ΔL (formule I-6) à cause de la variation de l'indice de l'étalon avec la température, ainsi que sa dilatation :

$$\Delta L = 2ne \cos r = k \lambda_0 = k \cdot \frac{c}{\nu_0} \quad (I-7)$$

d'où

$$\frac{d\nu_0}{\nu_0} = - \left. \frac{d(\Delta L)}{\Delta L} \right|_{r=\text{cste}} = - \left(\frac{dn}{n} + \frac{de}{e} \right) \quad (I-8)$$

où λ_0 (respectivement ν_0) est la longueur d'onde (resp. la fréquence) dans le vide du rayonnement et k un entier. On en déduit que :

$$\frac{d\nu_0}{dT} = -\nu_0 \left(\frac{1}{n} \cdot \frac{dn}{dT} + \frac{1}{e} \cdot \frac{de}{dT} \right) \quad (I-9)$$

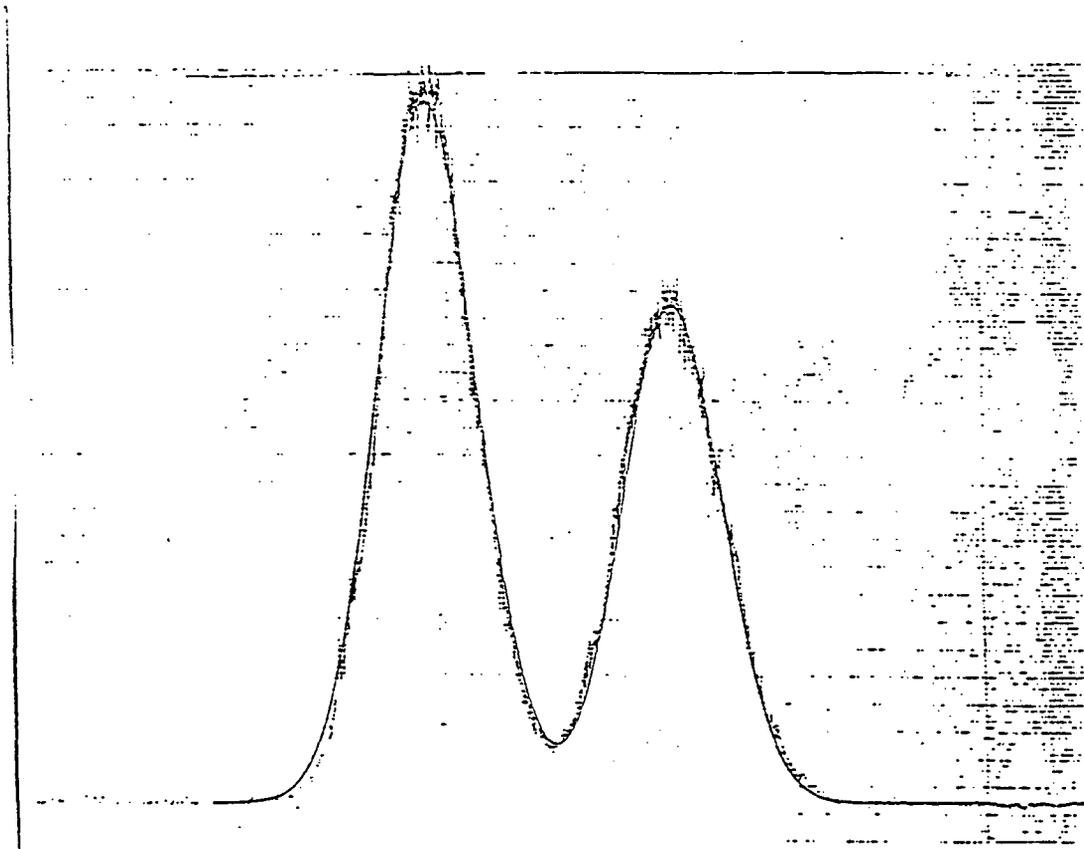


Figure I-12

Fluorescence des raies C_9 (à gauche) et C_8 (à droite) de l'hélium-3 par balayage de la fréquence du laser. La courbe en trait plein est la somme de deux gaussiennes, de largeur $D=13\text{mm}$ et écartées de 45mm , correspondant à $6,74\text{GHz}$. La largeur expérimentale est donc : $D_{\text{exp}} = 1,9\text{GHz}$. La largeur du laser est alors de $1,5\text{GHz}$ (voir texte).

I - 13

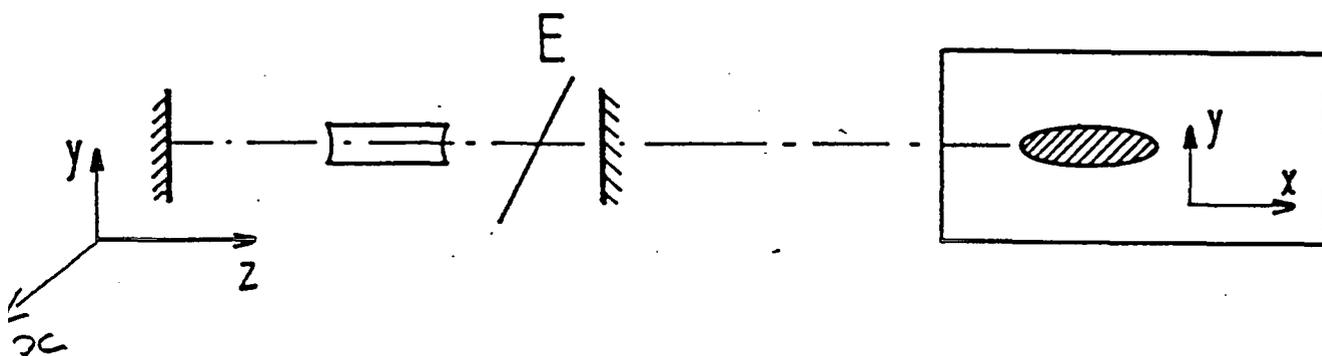


Figure I-13

Effet de l'inclinaison d'un étalon autour de l'axe Ox sur la forme du mode laser (voir texte):

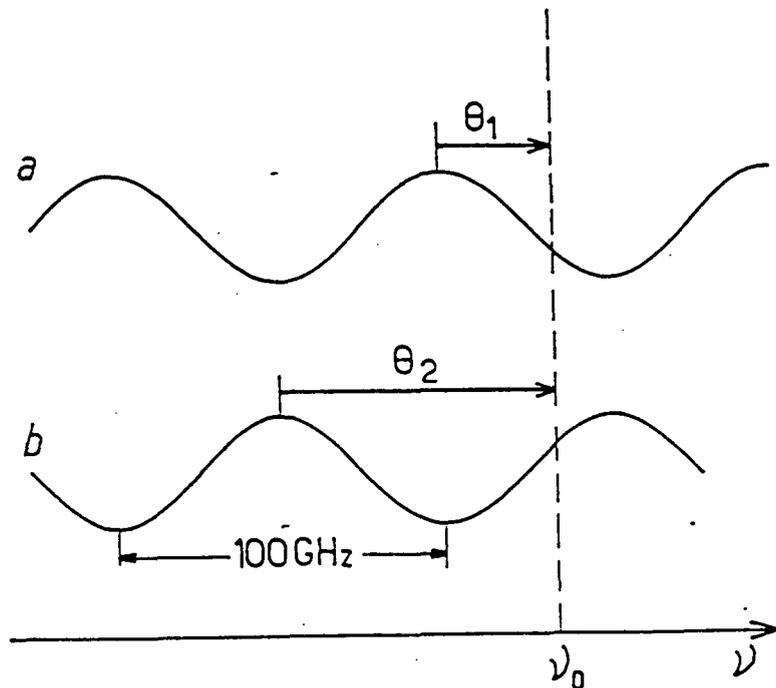


Figure I-14

Effet de la position relative des modes de l'étalon par rapport à la raie de l'hélium désirée. L'inclinaison de l'étalon déplace ses modes vers la droite (fréquence plus élevée). Les modes représentés correspondent à une incidence normale pour deux étalons d'épaisseur différente de $\frac{\lambda}{2}$. Pour accorder le laser sur la fréquence ν_0 , l'étalon "a" sera incliné d'un angle θ_1 plus petit que l'angle θ_2 nécessaire à l'étalon "b", entraînant une perte de puissance plus forte pour le deuxième étalon.

D'après Optics Guide 4 de Melles Griot, on a pour la silice fondue :

$$\frac{dn}{dT} = 1,28 \cdot 10^{-5} K^{-1} \quad \text{de } 0 \text{ à } 700^\circ C \quad (I-10a)$$

$$\frac{1}{e} \frac{de}{dT} = \frac{1}{3} \frac{1}{V} \frac{\partial V}{\partial T} \Big|_p = \frac{1}{3} 5,5 \cdot 10^{-7} K^{-1} \quad (I-10b)$$

L'effet prépondérant est dû à la variation d'indice. On obtient finalement :

$$\frac{d\nu_0}{dT} = -2,7 GHz K^{-1} \quad (I-11)$$

indépendamment de l'épaisseur de l'étalon. Le déplacement des modes de l'étalon par échauffement est opposé à celui induit par une augmentation de l'angle d'incidence. Donc, si la puissance laser varie, la température de l'étalon change à cause de la variation de la puissance absorbée.

Une solution commode est d'utiliser un étalon dont on règle la température au lieu de l'incliner. En effet, d'après la formule I-6, une variation de température de $50^\circ C$ entraîne un déplacement des modes supérieurs à $100 GHz$. On peut ainsi, simplement en changeant la température de l'étalon, accorder le laser sur telle ou telle raie de l'hélium sans changer ses caractéristiques. Nous avons adopté cette solution et construit des supports pour les étalons permettant de fixer leur température. Cette régulation, au dixième de degré près, est réalisée très classiquement à l'aide d'un système à effet Peltier (qui permet de chauffer ou de refroidir) et d'un boîtier électronique d'asservissement du courant délivré au bloc à effet Peltier pour maintenir la température de l'étalon (mesurée sur le support par une thermistance) à la valeur choisie. Notre système nous permet d'obtenir des températures pour le support variant de moins d'environ $5^\circ C$ à environ $70^\circ C$. De fait, la plage de température accessible à l'étalon est plus faible à cause du couplage thermique de l'étalon avec l'air ambiant. Cet effet pourrait être diminué en plaçant l'étalon dans une enceinte à la température désirée, mais cela demanderait plus de place dans la cavité. Néanmoins, la variation de température disponible est suffisante pour que l'on puisse accorder le laser sur plus de $30 GHz$, ce qui est suffisant.

En pratique, les deux étalons (mince et épais) sont thermostatés. La procédure pour l'affinement et l'accord du laser est identique à celle décrite précédemment (cf. § I-3-3-1) à un détail près : au lieu d'incliner l'étalon jusqu'à être centré sur la raie désirée, on l'incline au minimum pour que l'affinement de la raie ait lieu, puis on accorde la fréquence en le chauffant ou en le refroidissant.

Nous avons ainsi obtenu une puissance laser de $5W$ pour une largeur spectrale d'environ $1,5 GHz$. Ce laser est plus stable dans le temps que la version non-thermostatée. De plus, le faisceau laser est rond, correspondant à une répartition régulière des modes transverses et à une bonne concentration de la puissance au centre, ce qui est favorable au pompage optique. Une polarisation nucléaire de l'hélium-3 de 88% (pression de $0,8 \text{ torr}$) a été obtenue en accordant le laser sur la raie C_8 (cf. § II-6).

I-4) Essai d'un nouveau matériau laser : le LMA:Cr,Nd

Le dopage de matériaux laser avec plusieurs ions (ou "codopage") est une technique maintenant bien étudiée pour nombre d'entre eux (par exemple $YAG:Cr,Nd$, $GSGG:Cr,Nd$, $YAG:Ce,Nd$ [Kaminskii, 81]). L'ion "donneur" (par exemple Cr^{3+}) absorbe l'énergie d'excitation puis la transfère à l'ion "accepteur" (par exemple Nd^{3+}), induisant ainsi la fluorescence de ce dernier. Ce transfert d'énergie peut être très efficace : pour le $GSGG:Cr,Nd$ (grenat de gadolinium scandium

gallium) il est supérieur à 80% [Pruss et al,82], [Lundt et al, 90]. Viana et al. viennent d'annoncer un rendement de 90% pour le $LMA:Cr,Nd$ [Viana et al, 90], mais avec une constante de temps relativement importante (μs) contre environ $25\mu s$ pour $GSGG : Cr, Nd$ [Lundt et al, 90] rendant le $LMA : Cr, Nd$ inapproprié pour les lasers à impulsion.

Nous avons pu tester dans des conditions identiques à celles décrites précédemment pour le LNA un seul et unique barreau de $LMA:Cr,Nd$ qui nous avait été gracieusement fourni par la société Union Carbide. Tous les résultats concernant ces tests ont fait l'objet de la rédaction d'un article, présenté ci-dessous. Il a été écrit en collaboration avec deux chimistes (Bruno Viana et Daniel Vivien) qui ont caractérisé le cristal (mesuré de la concentration de chaque dopant) et mis en évidence le transfert d'énergie du chrome vers le néodyme par comparaison de la fluorescence des deux ions avec ceux de LNA et $LMA:Cr$ témoins. Pour notre part, nous avons montré l'existence de l'effet laser dans ce matériau en pompage transverse par lampes continues. Nous avons également mis en évidence la présence de l'effet STON statique (Smoothing of Thermo-Optical inhomogeneities) dans ces conditions [Scerbakov, 88]. Cet effet correspond à une diminution de l'effet de lentille thermique (cf. § I-1-1) au centre du barreau, l'échauffement ayant lieu essentiellement à la périphérie de celui-ci du fait de la densité optique élevée du $LMA:Cr,Nd$ (densité optique due à la présence du chrome). Le gradient thermique au centre du barreau est ainsi, à puissance lumineuse absorbée équivalente, plus petit pour le $LMA:Cr,Nd$ que pour le LNA , d'où un effet de lentille thermique plus faible pour le matériau codopé. L'évaluation de l'échauffement du barreau à partir de la valeur de la lentille thermique et sa comparaison avec le LNA sont détaillés après l'article. De même, le principe du transfert d'énergie est précisé dans ces compléments.

I-4-1) Caractérisation et propriétés lasers du $LMA:Cr,Nd$

Les barreaux B et C de l'article correspondent aux barreaux B et C de la partie I-1 ($B : LNA$ avec des faces de rayon de courbure $r_c = 60cm$; $C : LNA$ avec $r_c = 45cm$). Les largeurs Doppler annoncées dans l'article sont mesurées à mi-hauteur de la raie, contrairement à la convention utilisée dans ce mémoire (demi-largeur à $1/e$). Il faut ainsi diminuer les valeurs de l'article d'un facteur $\sqrt{2}$ pour pouvoir les comparer avec celles de ce mémoire.

En outre, une erreur s'est glissée dans la figure 6 mais ne remet pas en cause le résultat discuté. La figure corrigée se trouve dans les compléments (§ I-4-2).

Characterization and laser properties of lanthanum magnesium hexa-aluminate activated by neodymium and chromium

C.G. Aminoff¹, C. Larat and M. Leduc

Laboratoire de Spectroscopie Hertzienne, Département de Physique de l'ENS, 24, rue Lhomond,
F-75231 Paris Cedex 05, France*

B. Viana and D. Vivien

Laboratoire de Chimie Appliquée de l'Etat Solide, E.N.S.C.P., 11, rue Pierre et Marie Curie, F-75231 Paris Cedex 05, France

Received 12 October 1990

Revised 4 December 1990

Accepted 28 December 1990

We report here the first results on laser action obtained with a 10 cm long rod of $\text{LaMgAl}_{11}\text{O}_{19}:\text{Cr, Nd}$ (LMA:Cr, Nd) in transverse pumping with continuous Kr lamps. The composition of the crystal was found to be approximately 4% Nd and 1% Cr. Fluorescence decay measurements gave the time constant and the efficiency of the energy transfer to Nd ions from excited Cr ions located in different sites of the lattice. A laser output power of 4 W was obtained. The laser properties of LMA:Cr, Nd were compared to those of LMA:Nd for different optical resonators and line narrowing techniques. Preliminary results show that the addition of Cr to the lattice decreases the thermal lensing problems.

1. Introduction

Neodymium-doped single crystals of various laser materials have long been studied for the generation of high power laser radiation in the near infrared [1]. Until now only the YAG:Nd laser (Nd-doped $\text{Y}_3\text{Al}_5\text{O}_{12}$) has achieved commercial importance but continuing efforts are made to develop new materials. Lanthanum magnesium hexa-aluminate $\text{La}_{1-x}\text{Nd}_x\text{MgAl}_{11}\text{O}_{19}$ (referred to as LMA:Nd) was recently discovered [2] and is considered as a new promising laser crystal because it can incorporate a higher Nd doping than YAG and the emission wavelength is more broadly tunable. Another advantage of LMA over YAG is that the fluorescence of the Nd activator ion can

be sensitized by other ions; this can result in a better matching between the spectral output of the pump lamps and the absorption bands of the crystal [3,4].

Laser action and tunability of LMA doped with Nd^{3+} has been observed both in CW and pulsed operation under longitudinal excitation by gas lasers [5–7]. More recently long rods of LMA:Nd crystals were transversely pumped with cw krypton arc lamps in commercial YAG:Nd cavities [8–10]. These lasers deliver several watts of continuous output power. However, the emission is severely limited by the breaking of the crystals due to heating of the rods under lamp pumping.

One way to decrease such thermal effects and also to increase the pumping efficiency in Nd doped crystals is to use codoping with other ions, such as Sm^{2+} and Ce^{3+} [11,12] or Cr^{3+} , which enhances the Nd^{3+} fluorescence by energy transfer. This latter ion seems to be the most promising one, because it has broad and strong absorption bands in the visible range and emits in the red–

¹ Permanent address: Department of Technical Physics, Helsinki University of Technology, SF-02150 Espoo, Finland.

* Unité de Recherche de l'Ecole Normale Supérieure et de l'Université Paris VI, associée au CNRS (U.R.A. 18).

near infrared region [13] where Nd^{3+} has strong narrow absorption transitions. For example very efficient energy transfer from Cr^{3+} to Nd^{3+} occurs in gadolinium scandium gallium garnets (GSGG) [14,15] and improves by a factor of two the efficiency of the GSGG laser. In $\text{LMA}:\text{Cr, Nd}$ the energy transfer has already been studied by several groups ([4,16]). The efficiency of the transfer was found to reach 90% [4]. However, the transfer rate is rather slow, which limits the usefulness of this material to CW laser applications.

In this article we report the first laser results obtained with a codoped $\text{LMA}:\text{Cr, Nd}$ crystal of large dimensions. The accurate concentration of both Cr and Nd ions was measured by two different methods on a small sample of this laser crystal. Time resolved experiments on the fluorescence of both ions showed evidence for energy transfer from Cr to Nd ions. The transfer efficiency was deduced from a comparison between the codoped sample and a $\text{LMA}:\text{Cr}$ crystal. Finally the laser properties of the codoped rod were studied under continuous pumping with Kr lamps and compared with those of $\text{LMA}:\text{Nd}$ rods.

Let us mention that the measurements reported here were performed with only one available crystal: the present results are thus only preliminary. The comparison between singly and codoped crystals was complicated by the fact that they exhibit different thermal lensing effects. For the same output power the material presents less thermal focusing when codoped with Cr and Nd than when only doped with Nd.

2. Characterization of the $\text{LMA}:\text{Cr, Nd}$ material

LMA crystals have a magnetoplumbite type structure (hexagonal, $P6_3/mmc$). The rod of $\text{LMA}:\text{Cr, Nd}$ was taken from a Czochralski boule grown by Union Carbide Corporation. It was a long cylinder parallel to the crystallographic a -axis. At the end of this piece two small disks were cut for characterization of the material.

2.1. Concentration of Cr^{3+} and Nd^{3+} ions

The absorption spectrum taken from one of these disks is shown in fig. 1. It presents two

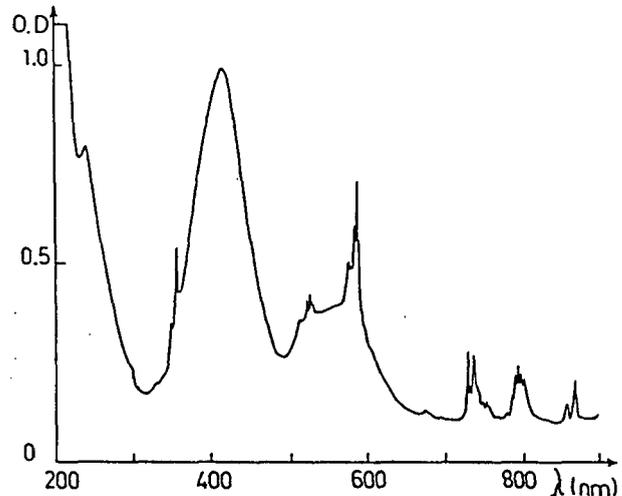


Fig. 1. Absorption spectrum of the $\text{LMA}:\text{Nd, Cr}$ crystal obtained on a Kontron Uvicon 860 double beam spectrometer. The unpolarized beam of the spectrometer was directed along the a -axis of the sample, whose thickness was 2.65 mm.

broad bands peaking at about 423 and 573 nm (associated with the ${}^4A_2 \rightarrow {}^4T_1$ and ${}^4A_2 \rightarrow {}^4T_2$ transitions of octahedral Cr^{3+}) and a number of narrow lines which are due to Nd^{3+} f-f transitions [4]. There is a shoulder on the strong absorption of the matrix in the UV which may probably be assigned to the absorption to the ${}^4T_{1b}$ state of Cr^{3+} , although a charge transfer transition of impurities, such as Fe^{3+} ions, cannot be ruled out as the origin of this feature.

The fluorescence of this codoped sample was also studied under excitation with a Xe arc lamp, filtered to eliminate wavelengths above 580 nm. The spectrum was identical to those obtained previously [4]; it exhibited peaks around 700 nm, attributed to Cr^{3+} ions, and two groups of peaks close to 900 and 1050 nm, which must be assigned to Nd^{3+} .

The concentrations of both ions were measured by the method of electron probe microanalysis. Eight measurements distributed along the diameter were performed. They gave very similar results, indicating that there are no significant gradients of Cr^{3+} or Nd^{3+} concentrations across the rod. Furthermore, as the distribution coefficients of Cr and Nd in the LMA matrix are close to 1 (of the order of 1.3 and 1.0, respectively [17]), one can

suppose that there are no concentration gradients along the rod. Assuming, in agreement with the magnetoplumbite type structure of the LMA matrix, that each formula unit contains 19 oxygen atoms, the formula of the LMA:Cr, Nd rod was thus found: La_{0.95}Nd_{0.04}Mg_{0.81}Al_{11.13}Cr_{0.01}O₁₉. This corresponds to 1.36×10^{20} Nd³⁺ ions and 0.34×10^{20} Cr³⁺ ions per cm³.

The chromium and neodymium content of the codoped rod was also independently determined by comparing its absorption coefficients at 423 nm for Cr³⁺ (⁴A₂ → ⁴T₁ transition) and 736 nm for Nd³⁺ (⁴I_{9/2} → ⁴F_{7/2}, ⁴S_{3/2} transition) with those of LMA:Cr or LMA:Nd samples with known Cr or Nd content [4,13]. The results agree with those of the electron probe microanalysis within a few percent.

The concentration of both Cr³⁺ and Nd³⁺ ions was thus found to be significantly smaller in this Union Carbide crystal than in the crystals previously studied [4]: the latter ones had been grown by the Verneuil (flame fusion) method; they exhibited a maximum energy transfer from Cr³⁺ to Nd³⁺ reaching 90% overall, with 80% occurring via nonradiative processes, for concentrations of 4.6×10^{20} Nd³⁺/cm³ and 1.7×10^{20} Cr³⁺/cm³. With the present crystal a less efficient transfer was thus expected.

2.2. Energy transfer from Cr³⁺ to Nd³⁺ ions

The time constant and efficiency of the energy transfer between ions was measured by the decay profiles of the fluorescence intensity for various excitation and detection wavelengths, according to the method described in ref. [4]. The experiment was performed at room temperature using a Molelectron DL12 dye laser pumped by a Molelectron UV-14 nitrogen laser and focused onto the sample for the pulsed optical excitation. The fluorescence of the crystal was detected through appropriate filters with a RCA 7102 photomultiplier tube (S1 response) connected to a Data precision model 6000 transient digitizer triggered by the laser pulse. The system response time was of the order of 2 μs.

2.2.1. Neodymium fluorescence decay

First the Nd³⁺ fluorescence at wavelengths above 1 μm was observed with filters suppressing

the visible and near infrared parts of the spectrum. Different wavelengths of excitation were used.

The decay profiles are slightly nonexponential. This may be understood knowing that, in the LMA matrix, Nd³⁺ ions are distributed among three kinds of sites located in the $z = \frac{1}{4}$ mirror plane of the magnetoplumbite structure [2]. To account for this departure from exponential decay, mean lifetimes τ_m have been calculated according to the expression given in ref. [4]:

$$\tau_m = \frac{1}{I_0} \int_0^\theta I(t) dt,$$

where I_0 is the fluorescence intensity at $t = 0$ and θ the time at which the fluorescence intensity drops below the dark current value of the detector. When excited at 736 nm, a wavelength at which only Nd³⁺ ions absorb, the decay curve leads to a τ_m value of 352 μs for the ⁴F_{3/2} excited state. This value is typical of excited Nd³⁺ ions in diluted samples of LMA:Nd [2]. When excited at 650 nm, a wavelength at which only Cr³⁺ ions absorb, a strong Nd fluorescence is observed. The decay constant is of the order of 560 μs, a typical value of the lifetime of Cr³⁺ excited states in low crystal field sites. This demonstrates the occurrence of energy transfer in LMA:Cr, Nd.

2.2.2. Chromium fluorescence decay

The Cr³⁺ fluorescence decay was studied at the two emission wavelengths $\lambda = 694$ and $\lambda = 750$ nm and for four different excitation wavelengths $\lambda = 532, 550, 610$ and 640 nm. These various combinations were used in order to distinguish between the Cr³⁺ ions located in different sites of the crystal, where the crystal field strength can significantly vary and change the Cr³⁺ to Nd³⁺ energy transfer efficiency [4]. It is assumed from previous studies that in LMA:Cr, the Cr³⁺ ions are distributed among 3 types of octahedral sites of the LMA structure [13]. The low crystal field sites are expected to be more and more selectively involved when the excitation wavelength increases [4,18]. On the other hand, for the emission, only the low crystal field sites contribute to the broad band around 750 nm, originating from the ⁴T₂ level, whereas all sites give rise to the sharp line at

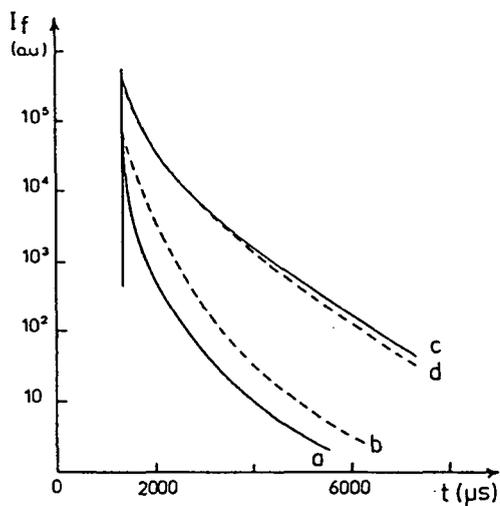


Fig. 2. Room temperature decay profile of the Cr^{3+} fluorescence in $\text{LMA}:\text{Cr, Nd}$ (curves a and b) and $\text{LMA}:\text{Cr}$ (curves c and d). Excitation wavelength: 640 nm. (a) and (c): emission at 750 nm by Cr^{3+} in weak crystal field. (b) and (d): emission at 694 nm by Cr^{3+} in strong crystal field.

694 nm (${}^2\text{E} \rightarrow {}^4\text{A}_2$ transition) [13,18]. Figure 2 gives an example of such decays for excitation at 640 nm. One observes that curves a and b decay faster than curves c and d: the presence of Nd in the codoped material shortens the lifetime of the excited Cr^{3+} ions. Furthermore, the decay is faster for fluorescence at 750 nm than at 694 nm in $\text{LMA}:\text{Cr, Nd}$ (compare curves 2a and 2b). This behaviour can be understood according to the spin allowed and spin forbidden character of the transitions occurring at 750 and 694 nm, respectively [4]. The average lifetimes of Cr^{3+} excited ions measured in this way are given in table 1:

The nonradiative Cr^{3+} to Nd^{3+} transfer efficiency ϵ can be deduced from the following expression [4]: $\epsilon = 1 - (\tau_m/\tau_m^0)$ in which τ_m (resp.

Table 1
Mean lifetime τ_m of Cr^{3+} excited states measured in $\text{LMA}:\text{Cr, Nd}$ for two emission wavelengths (694 and 750 nm) and four excitation wavelengths.

Excitation fluorescence	532 nm	550 nm	610 nm	640 nm
694 nm	810 μs	950 μs	613 μs	620 μs
750 nm	970 μs	820 μs	458 μs	330 μs

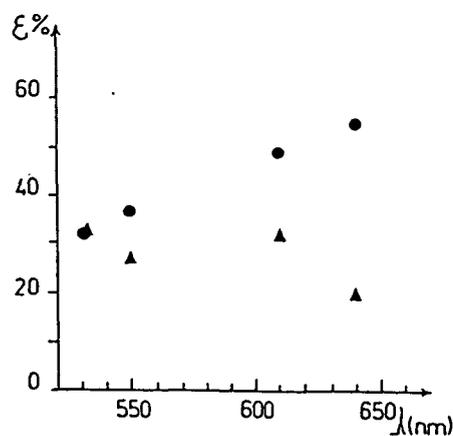


Fig. 3. Efficiency ϵ of the energy transfer from Cr^{3+} to Nd^{3+} ions in the $\text{LMA}:\text{Cr, Nd}$ crystal under investigation, for increasing values of the excitation wavelength. Dots refer to Cr^{3+} sites emitting at 750 nm, triangles to Cr^{3+} sites emitting at 694 nm. The data show a higher energy transfer efficiency for Cr^{3+} sites of low crystal field (see text).

τ_m^0) are the mean chromium decay times, with (resp. without) Nd^{3+} in the crystal. The τ_m^0 values were obtained by recording the decay curves of a $\text{LMA}:\text{Cr}$ crystal used in a previous study [13] and containing 5 times more Cr^{3+} than the $\text{LMA}:\text{Cr, Nd}$ sample under investigation. Although it should have been better to use a reference sample with the same Cr^{3+} concentration, one knows that, at these very low doping levels, the chromium excited state lifetimes are not very sensitive to the concentration [13]. The ϵ values are plotted in fig. 3 as a function of the excitation wavelength. The decay curves being nonexponential, these values can be taken as rough estimates of the transfer efficiency. However, it is clearly higher for the chromium ions which experience low crystal-field strength (emission at 750 nm, excitation at long wavelength) than for chromium in high crystal field strength mainly contributing to the 694 nm fluorescence. The ϵ values found are in the range 25–55%, to which a few percent must be added to account for the radiative energy transfer.

Thus the $\text{LMA}:\text{Cr, Nd}$ crystal under investigation here does exhibit significant energy transfer from Cr to Nd ions, even if the concentration of the ions is too low for an optimized efficiency of the energy transfer. However, previous studies [4]

have demonstrated that the transfer rate is rather slow compared to the intrinsic Nd^{3+} excited state lifetime ($\sim 360 \mu\text{s}$) [2]; the laser action should mainly benefit from the codoping with Cr^{3+} under continuous excitation by broad band lamps.

3. Laser properties of LMA:Nd and LMA:Cr, Nd in lamp pumping

Laser action of LMA single crystal rods was studied under excitation by continuous Kr arc lamps in the laser head of a YAG 910 Micro-Contrôle cavity. The earlier described LMA:Cr, Nd crystal (rod A) was compared to two other crystals of LMA:Nd (rods B and C) purchased from Union Carbide Corporation. All rods were cylinders cut parallel to the a -axis and had the same dimensions: 105 mm in length and 5 mm in diameter. The Nd^{3+} doping concentration was 15% in crystals B and C and 4% in crystal A (containing also 1% of Cr^{3+}).

3.1. Thermal focusing of crystals

We first studied the thermal focusing effects induced in the crystals by the temperature gradients between the center and the outside of the rod [19]. The pumped rods are equivalent to thick lenses with pump dependence of the focal distance and the stability domains of the resonator are thus reduced. If one assumes that the crystal is uniformly heated by the lamps and that the temperature on the cylinder surface is uniform as it is cooled by water, one can calculate the propagation of a Gaussian beam through the rod and the stability conditions of the laser [20]. The focusing problems are particularly severe with long rods of LMA, because the thermal conductivity κ of its lattice is poor: κ is of the order of $40 \text{ mW cm}^{-1} \text{ K}^{-1}$ along the c -axis and $60 \text{ mW cm}^{-1} \text{ K}^{-1}$ in the (a, b) plane [21]. For comparison, $\kappa = 130 \text{ mW cm}^{-1} \text{ K}^{-1}$ for YAG matrices. To partially compensate for the thermal focusing, the ends of the LMA rods were curved with a 60 cm radius (rods A and B) or a 45 cm radius (rod C).

We measured the focal distances of all three rods in the laser head as a function of the lamp

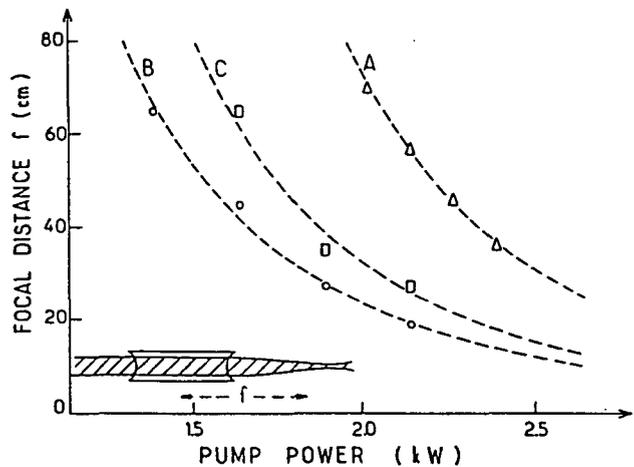


Fig. 4. Thermal focusing effects under lamp pumping excitation for three LMA rods 105 mm in length, 5 mm in diameter, cut along the a -axis; (A) LMA:Cr, Nd crystal (4% Nd, 1% Cr), end faces with a 60 cm radius of curvature; (B) LMA:Nd crystal (15% Nd), 60 cm radius; (C) LMA:Nd crystal (15% Nd), 45 cm radius; f is the focal distance measured from the center of the rod.

power using an expanded He-Ne beam. The output beam exhibited some astigmatism which was ignored here. In fig. 4 are plotted the average values of the apparent focal distances f measured from the center of the rod. As expected at given pump power the thermal focusing is better compensated in rod C than in rod B, due to the shorter radius of curvature of the end faces. Comparison between rods A and B, cut with the same radii, clearly shows that the thermal focusing effects are weaker in the LMA:Cr, Nd crystal under investigation than in the LMA:Nd rod.

Of course, the comparison between crystals would be more relevant if they had had the same Nd concentration. However, for lamp pumped LMA:Nd crystals we previously observed only a weak dependence of the thermal focusing on Nd concentration (between 8 and 15%). Assuming this is true also at a 4% concentration, the results of fig. 4 suggest that the codoping with Cr decreases the focusing effect. Such results have been observed already in a coactivated GSGG:Cr, Nd matrix [22]. They were described as a smoothing of thermo-optical inhomogeneities (static STON effect), which consists of the "suppression of ther-

mal gradients by inhomogeneous pump energy deposition resulting from the increase of the optical density of the active media" (p. 981, ref. [22]). In fact, the presence of Cr^{3+} ions considerably increases the average absorption coefficient for the pumping light (the oscillator strength of the Cr^{3+} and Nd^{3+} transitions are of the order of 10^{-4} to 10^{-6} , respectively). Using the absorption cross-section for the ${}^4\text{A}_2 \rightarrow {}^4\text{T}_1$ band of Cr^{3+} in LMA, $\sigma = 1.3 \times 10^{-19} \text{ cm}^2$ [4], we obtain the absorption coefficient $\alpha = 4.4 \text{ cm}^{-1}$ for rod A. This means that roughly 50% of the lamp emission power in the blue-green spectral region incident on the rod is absorbed within 1.5 mm from the rod surface. Because of the large quantum mismatch between absorbed blue photons and IR laser photons, a larger fraction of the absorbed power in this region is converted into heat, and an enhancement of the heating effect close to the surface could then be assumed. This would lead to a smoothing of the temperature near the rod axis and hence to a weaker refractive effect on the laser beam. Further studies of codoped rods with various concentrations are needed to verify whether this effect

is significant here. However, other reasons, dealing with Cr to Nd energy transfer mechanisms, can be thought of to account for the different thermal behaviour of the codoped material.

3.2. Laser output power

The laser properties of the LMA:Cr, Nd crystal (A) were tested in a 35 cm long cavity limited by two plane mirrors, as shown in fig. 5. Laser action was observed, and an output power close to 4 W at 2.2 kW lamp power was recorded with an output coupler having 1% transmission (see curve a). For comparison, we also operated the LMA:Nd crystals B and C (15% Nd doping) in the same resonator. We obtained an output power of 7.5 W with rod B free running at $1.08 \mu\text{m}$ (curve b), and nearly 10 W with rod C (not shown in the figure). The curves a and b can be compared directly as they refer to rods with the same dimensions and radii of curvature of the end faces, and are recorded using the same resonator configuration and outcoupling mirror.

From fig. 5 we find that the slope efficiency of the codoped material A (4% Nd) is about half the efficiency of the rod B (15% Nd), with a slightly higher threshold for A than for B. One can note that the ratio of the slope efficiencies of rods A and B is significantly larger than the ratio of neodymium concentrations, which is close to one fourth. This result may be an indication of the energy transfer from Cr^{3+} to Nd^{3+} increasing the pumping efficiency in rod A. However, the different optical densities for the pumping light lead to different thermal lensing behaviour (cf. the STON effect discussed above) and possibly to differences in the radial distribution of excited Nd^{3+} ions in the rods. These effects influence the transverse multimode structure and resonator stability, and may thus contribute to differences in the output characteristics, thereby complicating a detailed comparison. Moreover, a possible difference in passive losses in the rods (too small to be measured accurately here) would also be present in the result.

The observed laser threshold for rod A is partly determined by geometrical reasons: this resonator is not optically stable at low excitation power, as

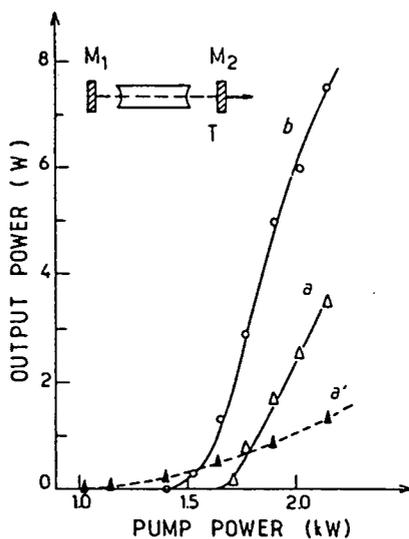


Fig. 5. Output power of the lamp pumped laser. Curves a and a' were taken with crystal A of LMA:Cr, Nd, curve b with crystal B of LMA:Nd (both crystals have curved ends with a 60 cm radius). The cavity length was 35 cm. For curves a and b, the output mirror was plane with $T = 1\%$, for curve a' it was curved with radius 50 cm and $T = 0.5\%$.

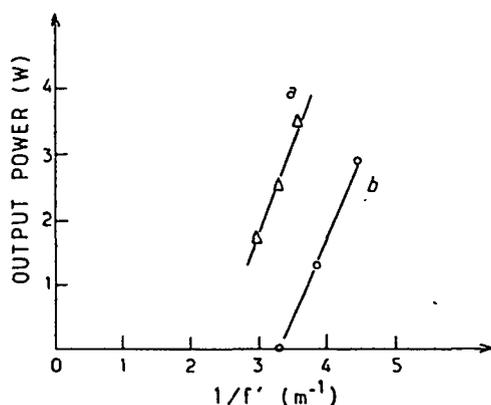


Fig. 6. Vertical axis: output power of the lamp pumped laser for a short cavity and a plane output mirror ($T=1\%$). Horizontal axis: inverse focal distance f' of the crystals (for definition, see text). (a) for LMA:Cr, Nd (crystal A), (b); for LMA:Nd (crystal B).

the thermal focusing effect in the crystal then is too weak to compensate the divergence at the end faces of the rod. A minimum of heating power is thus required to bring the resonator into a region of stability. In fact, using a curved output mirror (50 cm radius of curvature, 0.5% transmission), which matches a diverging beam and displaces the stability region towards lower pump power, we recorded the output power represented by curve a' in fig. 5. Here the threshold dropped by 40%, a larger decrease than expected only from the reduction in output transmission losses (the passive losses in the rods were estimated to be of the order of 1%).

Even if the gain is smaller in the codoped material, the thermal focusing is also weaker: we thus propose another way to plot the data as shown in fig. 6. Here we relate the output power to a focal distance f' characterizing the thermal heating of the crystal. The distance f' is defined as the intrinsic focal length of the rod measured from its center, in the absence of refraction at the end faces (f' is deduced from the f values plotted in fig. 4(b) using a geometrical optics model). The comparison between curves a and b in fig. 6 shows that for a given average thermal gradient the codoped crystal delivers significantly more output power than LMA:Nd. One reason could be that the Cr^{3+} ions increase the efficiency of the pumping of the Nd^{3+} ions for the same absorbed heat-

ing power. Another idea is that, as previously suggested, the Cr^{3+} ions decrease the thermal gradient across the rod. In either case, this could mean a possibility for extracting higher output power from the codoped material without breaking the crystal by increasing the pump power above the present arbitrary limit (so far we used only 55% of the maximum rated available current).

3.3. Line narrowing

The emission wavelength of the LMA lasers and their spectral structure were also studied, in view of applications to atomic and nuclear physics experiments. The polarization of the laser output was found to be the same for all three crystals, namely with the electrical field vector perpendicular to the c -axis. LMA:Nd crystals can emit on two bands centered around 1.05 and 1.08 μm . The free running wavelength differs according to the concentration of Nd. We observed in LMA:Nd that a low doping level favours $\lambda = 1.05 \mu\text{m}$; at a high doping level, such as in crystals B and C, only $\lambda = 1.08 \mu\text{m}$ is emitted, when the mirror reflectivities are the same for the two wavelengths. The crystal A of LMA:Cr, Nd emits at $\lambda = 1.05 \mu\text{m}$. In the absence of selective elements in the cavity, the structure of transverse modes was broad and the spectral width was of the order of 100 GHz.

For all three crystals, we studied different combinations of birefringent filters and solid uncoated etalons, used both for frequency tuning and line narrowing. Several solutions could be found which all gave equivalent results. For instance, a birefringent filter of 2 mm thickness and an etalon of 0.7 mm thickness narrowed the line to about 2.5 GHz, whereas two etalons of 0.1 and 1 mm thickness, respectively, without birefringent filter, gave roughly a 2 GHz line. The combination of the birefringent filter (2 mm) and the two etalons (0.1 and 1 mm) reduced it to 1 GHz. The loss in power was mainly due to the walk-off in the etalons used for the fine tuning of the frequency. It thus depended critically on the exact thickness of the glass plate with respect to the tuning wavelength.

No substantial difference was found between the LMA:Nd and the LMA:Cr, Nd crystals,

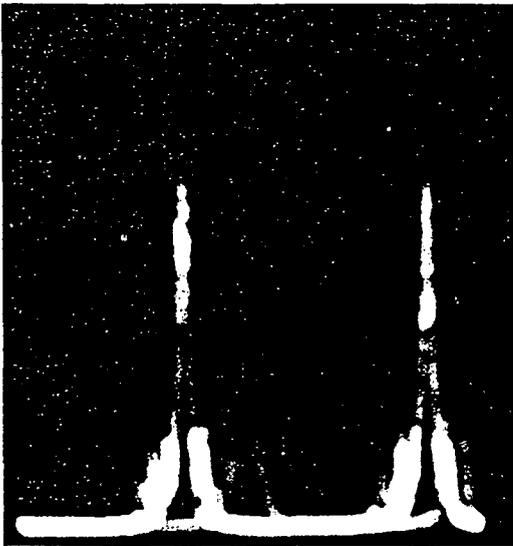


Fig. 7. Mode structure of the LMA:Cr, Nd laser analysed with a Fabry-Perot interferometer of 15 GHz free spectral range. The line width of the laser is of the order of 2 GHz. The laser cavity (length 35 cm) and contains two solid uncoated etalons of thickness 1 and 0.1 mm, respectively.

except for a smaller dispersion between transverse modes and a higher frequency stability for the LMA:Cr, Nd, which could be attributed to the less severe gradients in this crystal. The best results at the helium wavelength ($1.08 \mu\text{m}$) were found with crystal C using a rather short cavity (35 cm in this case) and two solid etalons (0.1 and 1 mm): the output power was 2.5 W with a 2 GHz line width for 2.2 kW of lamp pumping. With the codoped crystal, 0.25 W could be obtained under the same conditions, giving a mode structure which is shown in fig. 7.

In short, we have optimized the optical resonators for lamp pumped LMA crystals as a function of the pump power. The output power was found to be limited mainly by the cracking of the crystals at higher pump power. The future might be more promising for the codoped material exhibiting less thermal problems.

4. Conclusion

This article gives preliminary results about the cw laser properties of an LMA:Cr, Nd crystal

with lamp pumping. Other doping levels in Cr and Nd ions, especially higher Nd concentrations, are needed to allow a more detailed comparison with LMA:Nd. However, it can already be concluded that this new material does lase with continuous lamp pumping, exhibits low thresholds and delivers more power than without Cr for a given thermal gradient. These results are promising and give hope for a powerful compact laser for several applications of optically pumped helium at $\lambda = 1.083 \mu\text{m}$ [23].

Acknowledgements

The authors want to thank Dr. M. Kokta from Union Carbide Corporation for kindly providing them with the long rod of codoped LMA material. They also thank Dr. A.M. Lejus who performed the electron probe microanalysis of the crystal.

References

- [1] A.A. Kaminskii, *Laser Crystals* (Springer, Berlin, New York, 1981).
- [2] A. Kahn, A.M. Lejus, M. Madsac, J. Thery, D. Vivien and J.C. Bernier, *J. Appl. Phys.* 52 (1981) 6864.
- [3] R.I. Gintoft, A.M. Zabaznov, N.M. Paltarak and A.P. Shkadarevich, *J. Appl. Spectr.* 48 (1988) 154.
- [4] B. Viana, C. Garapon, A.M. Lejus and D. Vivien, *J. Lumin.* 47 (1990) 73.
- [5] V.M. Garmash, A.A. Kaminskii, M.I. Polyakov, S.E. Sarkisov and A.A. Filimonov, *Phys. Stat. Sol. (a)* 75 (1983) K111.
- [6] Kh.S. Bagdasarov et al., *Sov. J. Quantum Electron.* 13 (1983) 639.
- [7] D. Vivien, A.M. Lejus, J. Thery, R. Collongues, J.J. Aubert, R. Moncorgé and F. Auzel, *C.R. Acad. Sci. Paris* 298 (1984) 195.
- [8] L.D. Schearer, M. Leduc, D. Vivien, A.M. Lejus and J. Thery, *IEEE Quantum Electron.* QE-22 (1986) 713.
- [9] C.G. Aminoff, C. Larat, M. Leduc and F. Laloë *Revue de Phys. Appl.* 24 (1989) 827.
- [10] P. Tin and L.D. Schearer, *J. Appl. Phys.*, in press.
- [11] S.A. Payne and L.L. Chase, *J. Opt. Soc. Am.* B3 (1986) 1181.
- [12] R.M. Brewer and M. Nicol, *J. Lumin.* 21 (1980) 367.
- [13] B. Viana, A.M. Lejus, D. Vivien, V. Poncon and G. Boulon, *J. Solid State Chem.* 71 (1987) 74.
- [14] D. Pruss, G. Huber, A. Beimowski, V.V. Laptev, I.A. Scherbakov and Y.V. Zharikov, *Appl. Phys.* B28 (1982) 355.

- [15] H. Lundt and H. Weidner, *Opt. Commun.* 75 (1990) 430.
- [16] V.A. Antonov, P.A. Arsenev, K.I.S. Bagdasarov and I.T. Makhmudov, *Sov. Phys. Cryst.* 33 (1988) 608.
- [17] C. Borel, Thèse de l'Université Paris VI (1990) Paris, France.
- [18] B. Henderson and G.F. Imbusch, *Optical spectroscopy of inorganic solids* (Clarendon, Oxford, 1989).
- [19] See, for instance, W. Koechner, *Solid State Laser Engineering* (Springer, New York, 1976), and W. Koechner, *Appl. Opt.* 9 (1970) 1429, 2548.
- [20] D. Metcalf, P. de Giovanni, J. Zachorowski and M. Leduc, *Appl. Opt.* 26 (1987) 4508.
- [21] D. Vivien, A.M. Lejus and J. Thery, unpublished results.
- [22] I.A. Scherbakov, *IEEE Quantum Electron QE-24* (1988) 979.
- [23] See ref. [9], and all references therein quoted.

I-4-2) Compléments à l'article précédent

I-4-2-1) Principe du transfert d'énergie dans les matériaux codopés

Les transferts d'énergies entre deux espèces ("donneurs" et "accepteurs") sont étudiées depuis plus de cinquante ans [Rem 1]. A cette époque, Förster [Förster, 48] puis Dexter [Dexter, 53] en firent une description détaillée, calculant notamment le taux du transfert d'énergie. Le processus est dû essentiellement au recouvrement du spectre d'émission du donneur (par exemple Cr^{3+}) avec le spectre d'absorption de l'accepteur (Nd^{3+}). Le transfert d'énergie peut ainsi se faire via l'échange d'un photon de fluorescence, mais l'effet prépondérant peut être décrit comme étant le transfert d'un photon virtuel via une interaction dipôle-dipôle-électrique (ou d'un ordre supérieur : dipôle-quadrupôle). Ces théories ont ensuite été étendues au calcul de l'évolution temporelle de la fluorescence des donneurs et des accepteurs [Inokuti et al, 65], et en incluant une corrélation dans la répartition des donneurs et accepteurs au sein de la matrice [Blumen et al, 86], [Rotman et al, 88]. Un résumé clair et concis de la théorie de Förster et Dexter peut être trouvé dans [Payne et al, 86].

L'ion chrome (Cr^{3+}) présente l'avantage d'avoir de larges bandes d'absorption dans le visible, contrairement au néodyme, et d'être de ce fait mieux couplé aux lampes d'excitation. De même, le chrome fluoresce dans le proche infrarouge où le néodyme présente des pics d'absorptions intenses (cf figure I-15). Les conditions favorables pour obtenir un transfert d'énergie du chrome au néodyme sont ainsi vérifiées (cf. figure I-16) [Gintoft et al, 88], [Antonov et al, 88].

I-4-2-2) Echauffement dans le $LMA:Cr,Nd$; comparaison de l'effet laser dans le $LMA:Cr,Nd$ et le LNA

La procédure de mesure de la distance de focalisation d'un faisceau parallèle par le barreau soumis à l'excitation des lampes est la même que pour le LNA , décrite au paragraphe I-3-1. Les résultats pour les barreaux A $LMA:Cr,Nd$ et B, C (LNA) étudiés sont reportés sur la figure I-21 (différente de la figure 4 de l'article précédent : la distance de focalisation f y étant comptée à partir du centre du barreau et non pas à partir de sa face de sortie comme dans ce mémoire).

On peut utiliser la formule I-1 et la figure I-19 du paragraphe I-3-1 pour en déduire l'échauffement du barreau. Mais, il faut se rappeler que cette formule a été établie pour un barreau uniformément chauffé. Ce n'est manifestement pas le cas pour le barreau de $LMA:Cr,Nd$ vu sa forte densité optique (cf. § I-1-1). Néanmoins, en première approximation on peut estimer que près du centre du barreau la variation radiale de la température est proche d'une parabole (la variation parabolique étant obtenue pour un échauffement uniforme du barreau). La valeur de l'échauffement que nous déterminons ainsi n'est donc valable qu'au centre du barreau (cf. figure I-22). La courbe obtenue pour le LNA est rappelée sous forme d'une droite. On retrouve que l'échauffement du $LMA:Cr,Nd$ est plus faible que celui du LNA au centre du barreau (effet STON) comme cela est discuté dans l'article (cf. § I-4-1). Les points sont également sensiblement alignés comme pour le LNA (cf. § I-3-1), prouvant que l'approximation faite sur le gradient thermique au centre du barreau est valable.

Il est intéressant de comparer l'effet laser entre le $LMA:Cr,Nd$ et le LNA pour un même échauffement local des matériaux. La figure 6 de l'article présente ce résultat mais une erreur s'est glissée dans le calcul de la distance focale "intrinsèque" ⁽¹⁾ des barreaux. Cette distance focale est approximativement proportionnelle à l'inverse de l'échauffement du barreau. La figure I-23 remplace donc la figure 6 de l'article. Elle représente la puissance laser en fonction de l'échauffement

⁽¹⁾ La focale "intrinsèque" d'un barreau étant liée à son échauffement après soustraction de l'effet de la courbure des faces du cristal.

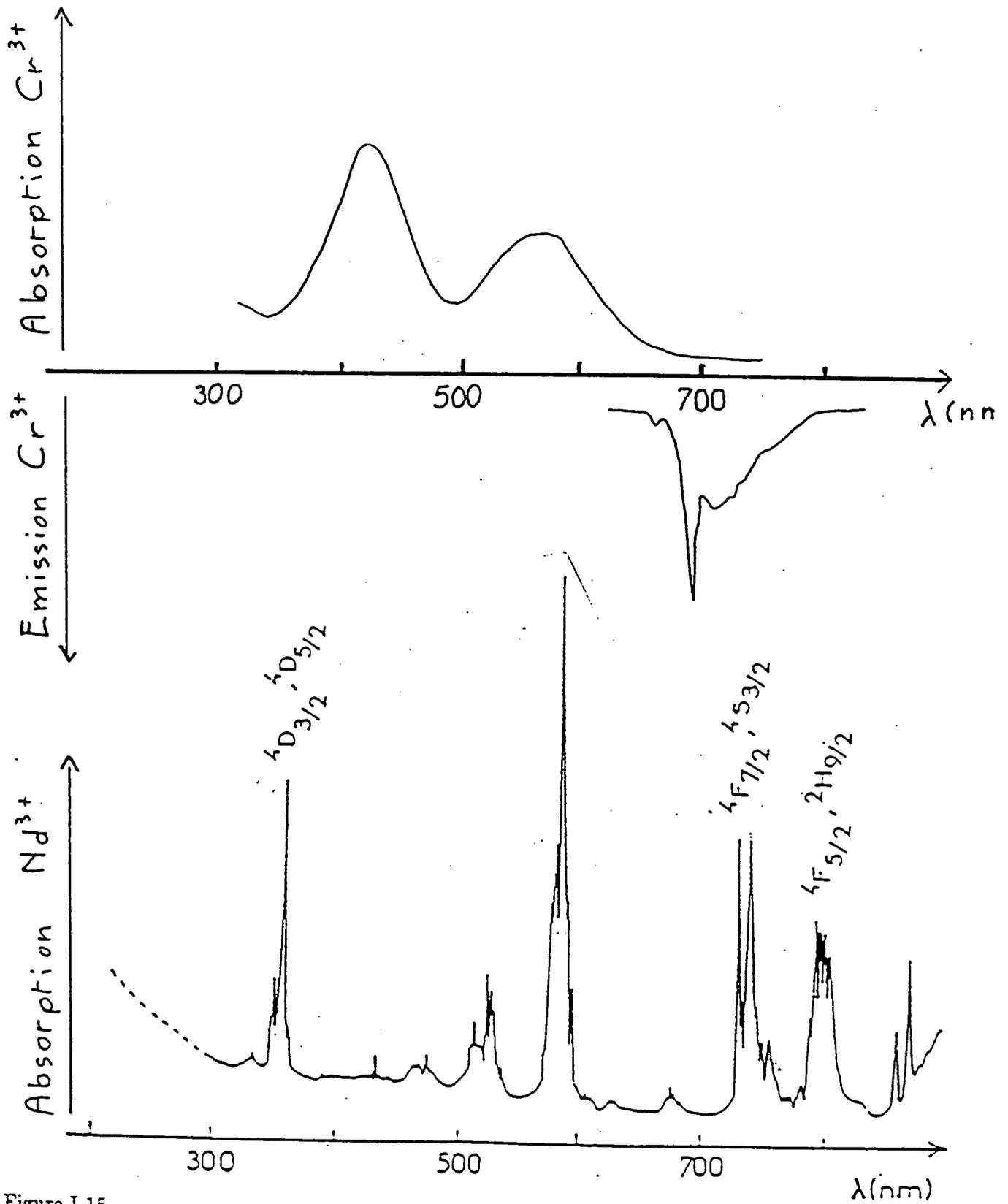


Figure I-15

Spectre d'absorption et de fluorescence du Cr^{3+} dans LMA:Cr et spectre d'absorption du Nd^{3+} dans le LNA (d'après []).

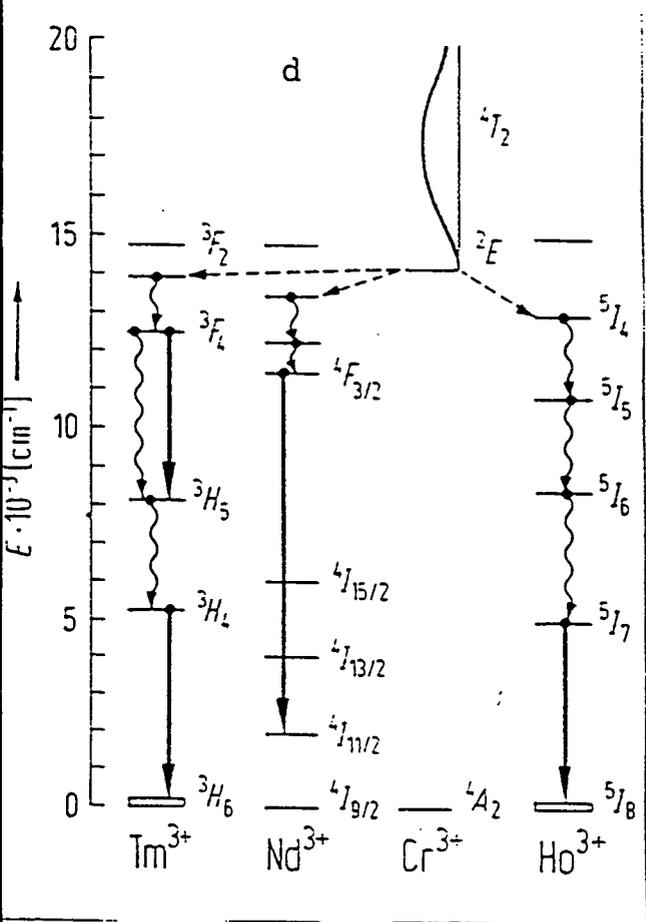


Figure I-16

Schéma de principe du transfert d'énergie entre le chrome et le néodyme (d'après [6b]).

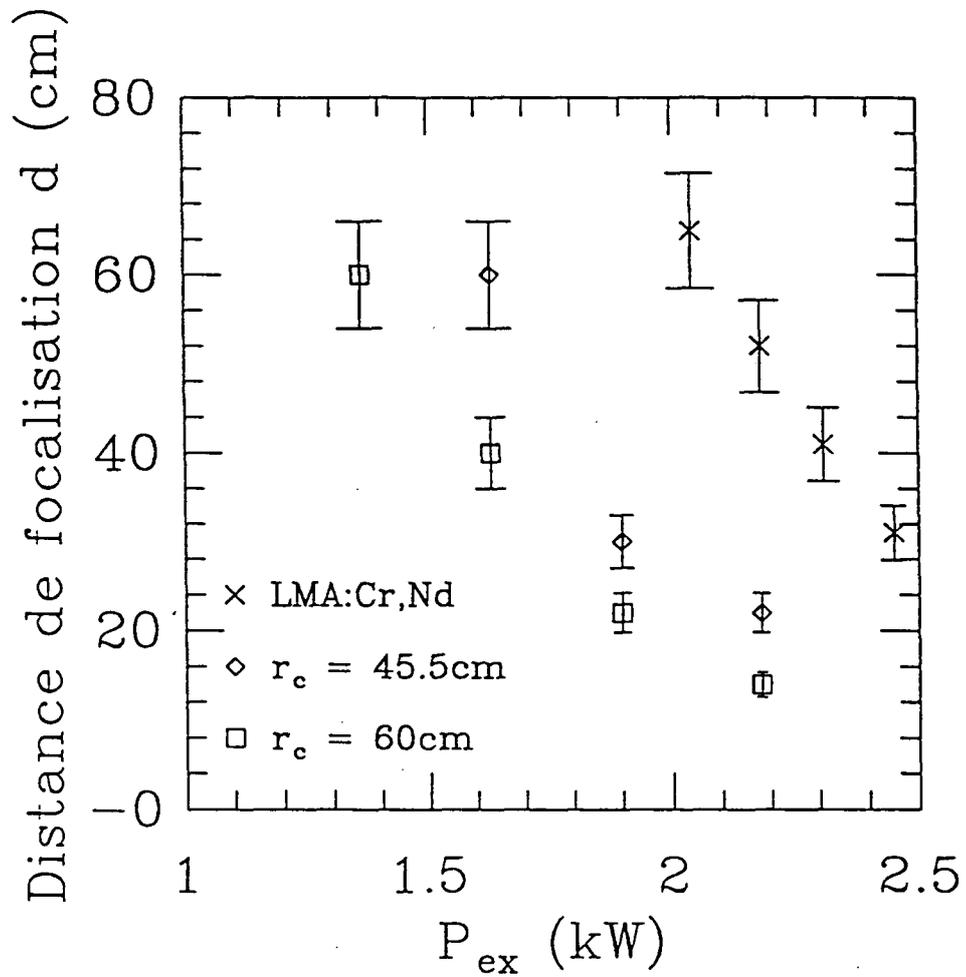


Figure I-21

Distance de focalisation thermique d (cm) pour diverses valeurs de la puissance d'excitation P_{ex} (kW). Croix : LMA:Cr,Nd ($r_c = 60cm$) ; carrés : LNA ($r_c = 60cm$) ; losanges : LNA ($r_c = 45,5cm$).

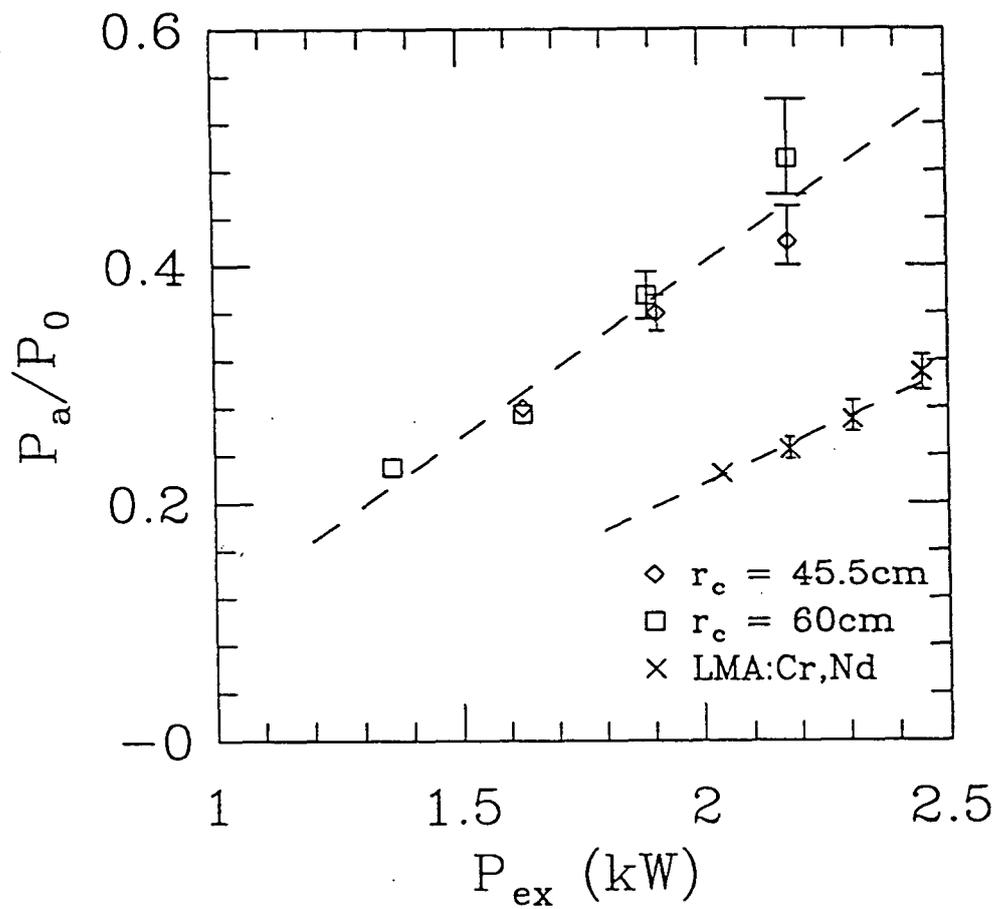


Figure I-22

Echauffement P_a/P_0 du barreau A (LMA:Cr,Nd) pour diverses valeurs de la puissance d'excitation. On a également rappelé les points obtenus pour le LNA.

I-23

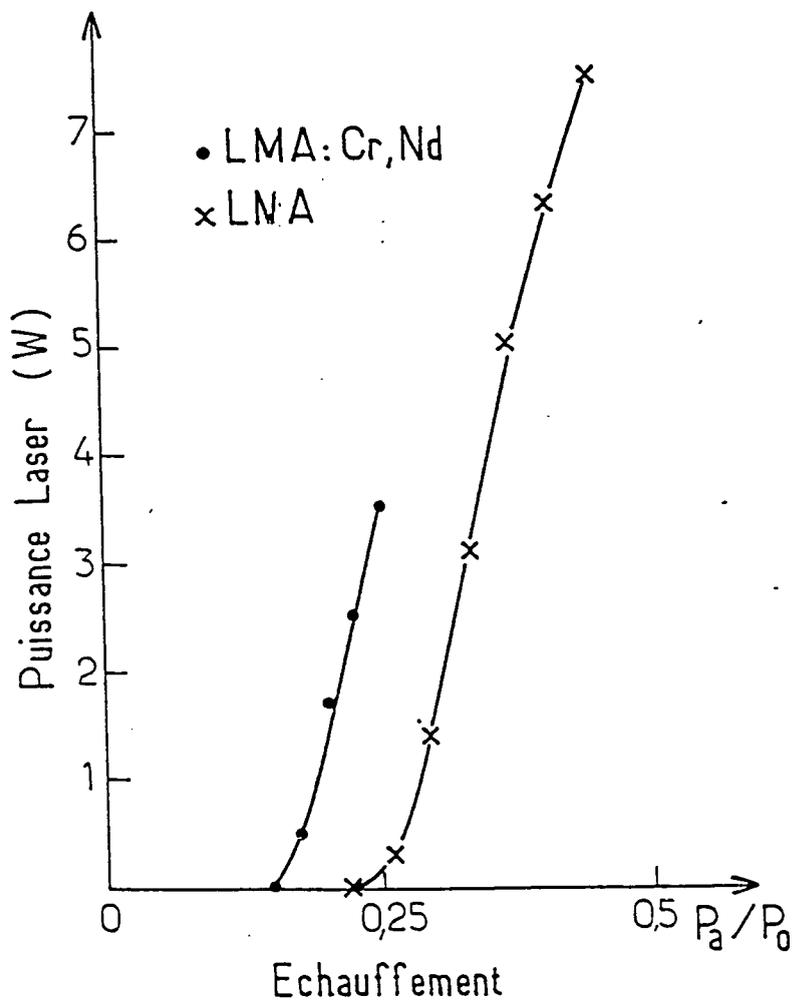


Figure I-23

Puissance laser P (W) délivrée par le barreau A (LMA:Cr,Nd) et le barreau B (LNA, $\tau_c = 60\text{cm}$) en fonction de l'échauffement P_a/P_0 .

du barreau pour le $LMA:Cr,Nd$ et pour le LNA . Comme discuté dans l'article, on trouve que, à échauffement donné, le matériau codopé délivre plus de puissance laser.

I-4-3) Conclusion

Nous avons montré que le $LMA:Cr,Nd$ peut délivrer une puissance laser de plusieurs watts ($4W$) en pompage continu par lampes au krypton. Dans les mêmes conditions, les barreaux de LNA testés fournissent une dizaine de watts. Le dopage en néodyme du $LMA:Cr,Nd$ étant environ quatre fois plus petit que celui du LNA , ces résultats sont très prometteurs. Il faudrait augmenter et optimiser la valeur des dopages de chaque ions pour obtenir une efficacité de transfert d'énergie similaire à celle obtenue sur de petits échantillons (90% [Viana et al, 90]), alors que celle de notre barreau a été évaluée à environ 40%. En tout état de causes, ces résultats sont très encourageants pour tout développement ultérieur de ce nouveau matériau laser.

I-5 - Bilan et perspectives pour le LNA

Avec un barreau de LNA pompé par lampes continues au krypton, nous avons obtenu une puissance laser de $10W$ en cavité nue et $5W$ sur une largeur de $1,5GHz$ (demi-largeur à $\frac{1}{e}$) accordable sur les transitions de l'hélium. La stabilité de ce laser est assurée par l'asservissement en température de deux étalons solides. De fait, la puissance laser maximale est fixée par le seuil de rupture à l'échauffement des barreaux : aussi ne pouvons nous utiliser que 50% de la puissance d'excitation disponible dans nos têtes lasers (prévues initialement pour le YAG).

Pour augmenter la puissance laser délivrée par ce matériau, plusieurs possibilités se présentent. On peut tout d'abord espérer des progrès dans la fabrication du matériau permettant à la fois d'obtenir des grands barreaux taillés parallèlement à l'axe c ⁽¹⁾ et si possible d'élever le seuil de rupture des barreaux en améliorant la qualité des cristaux. D'autre part, les lampes utilisées, prévues pour le YAG , pourraient être optimisées pour le LNA , les bandes d'absorption de ces deux matériaux étant décalées de quelques de nanomètres en longueur d'onde. On peut également envisager de changer de mode d'excitation : l'utilisation de diodes lasers accordées sur une bande d'absorption du néodyme devrait permettre, pour un même échauffement du barreau, d'atteindre des densités d'excitations plus fortes d'où une puissance laser plus élevée. Par cette technique, le YAG délivre une dizaine de watts par pompage transversal avec une barrette de diodes laser. D'après [41], la comparaison entre les potentialités du LNA , du YAG et d'autres matériaux est favorable au LNA à bien des égards.

Une autre voie pour augmenter la puissance fournie par ce laser est le développement du $LMA:Cr,Nd$ avec des concentrations en chrome et en néodyme plus élevées que celles du barreau testé.

En tout état de cause, nous avons réalisé un laser puissant, fiable, d'emploi aisé et qui est très bien adapté au pompage optique de l'hélium comme nous allons le voir dans le chapitre suivant.

⁽¹⁾ On s'attend à ce que l'effet laser soit plus élevé pour un cristal taillé suivant l'axe c que suivant l'axe a (barreaux disponibles actuellement (cf. § I-1 [Scheerer et al, 86]))

CHAPITRE II

EFFICACITE DU POMPAGE OPTIQUE PAR LASER
DANS L'HELIUM-3 PUR
ET DANS LES MELANGES HELIUM-3/HELIUM-4

L'hélium-3 dilué dans de l'hélium-4 superfluide a le même comportement qu'un gaz parfait, mais il présente l'avantage par rapport au gaz d'hélium-3 de conserver une densité non nulle quand la température tend vers zéro ⁽¹⁾. Il est ainsi possible de porter un tel système en dessous de la température de Fermi contrairement à l'hélium-3 pur gazeux. L'intérêt pour ce fluide et de son comportement quand l'hélium-3 est polarisé nucléairement est donc important. De nouvelles expériences portant sur ces solutions à très basse température sont en constructions à l'ENS pour étudier notamment leurs propriétés de transport ou leurs diagrammes de phases. La question qui se pose est de savoir s'il est possible d'obtenir des polarisations nucléaires de l'hélium-3 importantes dans ces mélanges par la technique du pompage optique. De fait, une orientation électronique peut être créée par pompage optique aussi bien pour les métastables d'hélium-3 que d'hélium-4. De plus, les collisions d'échange de métastabilité (assurant le couplage entre l'orientation électronique des métastables et la polarisation nucléaire des atomes dans l'état fondamental, cf. Préliminaire) peuvent se produire entre deux atomes d'hélium-3 (cas du gaz pur, par exemple) ou entre isotopes différents (dans les mélanges). C'est ainsi qu'il est possible, dans un mélange, de polariser nucléairement l'hélium-3 par pompage optique sur les métastables d'hélium-4, le transfert d'orientation étant assuré par les collisions d'échange de métastabilité. Il reste à connaître l'efficacité de ce pompage optique pour obtenir de fortes polarisations nucléaires. De plus, nous nous sommes posés la question de savoir si dans certaines situations, à puissance laser donnée, le pompage optique n'était pas susceptible de créer une polarisation nucléaire de l'hélium-3 plus importante dans un mélange hélium-3/hélium-4 que dans le cas de l'hélium-3 pur, compte tenu du fait que le laser est mieux absorbé par l'hélium-4 que par l'hélium-3. De telles situations peuvent être intéressantes par exemple pour les applications de magnétométrie ou en Physique Nucléaire (cibles, filtres polariseurs à neutrons).

Le pompage optique sur une raie de l'hélium-3 dans un mélange est similaire au cas de l'hélium-3 pur (sauf pour la raie C_9 qui est superposée aux raies D_1 et D_2 de l'hélium-4, cf. figure P-3 du préliminaire), la présence des métastables d'hélium-4 n'induisant qu'une relaxation supplémentaire pour l'orientation (cf. § II-1-4). Le pompage optique sur la raie C_9 n'est pas intéressant dans ces conditions. En effet, à température ambiante, les raies D_2 et C_9 (ainsi que D_1) ne sont pas résolues. Or on verra que le pompage optique de l'hélium-4 est très inefficace sur D_2 .

Le pompage optique de l'hélium-3 pur a déjà été bien étudié, un modèle ayant été développé pour décrire ces processus [Nacher et al, 85]. La théorie a été trouvée en bon accord avec les résultats expérimentaux. De même, le pompage optique des métastables d'hélium-4 pur a fait l'objet de nombreuses études, notamment pour des applications en magnétométrie. Notre but a donc été d'étendre le modèle existant pour l'hélium-3 pur au cas des mélanges et de le confronter aux résultats d'expériences menées parallèlement.

Ce modèle tient compte exactement des collisions d'échange de métastabilité entre atomes métastables et fondamentaux des deux isotopes, ainsi que des phénomènes d'absorption du faisceau laser et d'émission spontanée et induite des états excités. Le modèle n'inclut pas, par contre, le phénomène éventuel de réabsorption des photons polarisés émis par émission spontanée. Toutes les collisions entre les différentes espèces présentes dans le plasma de la décharge ⁽¹⁾ ou avec les parois sont décrites de façon approchée, à l'exception des collisions d'échange de métastabilité entre atomes dans l'état fondamental et atomes métastable. Les équations non-linéaires obtenues imposent une résolution numérique dans le cas général. Nous donnons une solution algébrique exacte dans le régime linéaire (c.à.d. aux faibles valeurs de polarisation).

⁽¹⁾ La pression de vapeur saturante de l'hélium-3 pur tend vers zéro quand la température diminue

⁽¹⁾ Les atomes métastables sont créés par une décharge radiofréquence et sont détruits principalement sur les parois.

Nous avons confronté le modèle à l'expérience dans deux domaines différents : le régime linéaire et le régime des fortes puissances laser. L'étude a porté sur les mélanges hélium-3/hélium-4 mais aussi sur l'hélium-3 pur par comparaison. L'accord entre la théorie et l'expérience est très satisfaisant. Nous avons ainsi montré que le pompage optique dans les mélanges hélium-3/hélium-4 peut être très efficace et permet d'obtenir des polarisations nucléaires importantes. Nous avons également identifié, pour les fortes puissances laser, les paramètres critiques pour obtenir des polarisations nucléaires importantes (polarisation circulaire et modes spatiaux du laser).

Après avoir détaillé le modèle, nous décrirons les méthodes expérimentales utilisées pour déterminer différents paramètres du modèle, notamment la densité de métastables, et mesurer la polarisation nucléaire. Nous présenterons et discuterons ensuite séparément les résultats numériques et expérimentaux pour le régime linéaire et pour le régime à forte puissance.

II-1 - Modélisation du pompage optique dans les mélanges hélium-3/hélium-4

II-1-1) Notations

Nous reprenons et étendons les notations de la référence [Nacher et al, 85]. Nous limitant au cas du pompage optique sur une des transitions de l'hélium-4, nous avons uniquement besoin de connaître les populations des niveaux 1^1S_0 et 2^3S_1 de l'hélium-3 et 1^1S_0 , 2^3S_1 et 2^3P de l'hélium-4 (cf. figure II-1).

L'état fondamental 1^1S_0 de l'hélium-3 a un spin d'origine purement nucléaire $I = \frac{1}{2}$ et est donc composé de deux sous-niveaux. Leurs populations respectives sont notées $\frac{1 \pm M}{2}$ où M est le taux de polarisation nucléaire ($-1 \leq M \leq 1$).

L'état métastable 2^3S_1 de l'hélium-3 se dédouble en deux sous-niveaux hyperfins $F = \frac{3}{2}$ et $F = \frac{1}{2}$ (cf. figure II-1). Appelons A_1 à A_4 les sous-niveaux $m_F = +\frac{3}{2}$ à $-\frac{3}{2}$ du niveau $F = \frac{3}{2}$ et A_5, A_6 les sous-niveaux $m_F = +\frac{1}{2}$ à $-\frac{1}{2}$ du niveau $F = \frac{1}{2}$ (cf. figure II-2). Appelons a_i les populations (densité volumique) des sous-niveaux A_i .

L'état fondamental 1^1S_0 de l'hélium-4 n'a pas de sous-structure.

L'état métastable 2^3S_1 de l'hélium-4 comporte 3 sous-niveaux $m_J = +1, 0, -1$ que nous appellerons A_7, A_8 et A_9 (cf. figure II-2). Appelons a_i la population (densité volumique) du sous-niveau A_i .

Le niveau 2^3P de l'hélium-4 se décompose en trois multiplets $J = 2, 1$ et 0 . Appelons E_1 à E_5 les sous-niveaux $m_J = +2$ à -2 de $J = 2$; E_6, E_7, E_8 les sous-niveaux $m_J = +1, 0, -1$ de $J = 1$; E_9 le niveau de $J = 0$ (cf. figure II-2). Appelons e_i la population (densité volumique) du sous-niveau E_i .

Appelons N_3 (resp. N_4) la densité volumique d'hélium-3 (resp. hélium-4) dans l'état fondamental et n_3 (resp. n_4) dans l'état métastable. Nous avons :

$$n_3 = \sum_{i=1}^6 a_i \quad (II-1a)$$

$$n_4 = \sum_{i=7}^9 a_i \quad (II-1b)$$

II-1-2) Collisions d'échange de métastabilité

Nous prolongeons le formalisme des collisions d'échanges de métastabilité introduit par Partridge et Series [Partridge et al, 66] pour l'hélium-3 pur. Quatre types de collisions d'échange de métastabilité peuvent se produire suivant la nature isotopique de l'atome dans l'état fondamental et de l'atome dans l'état métastable. Les collisions entre deux atomes d'hélium-4 sont purement

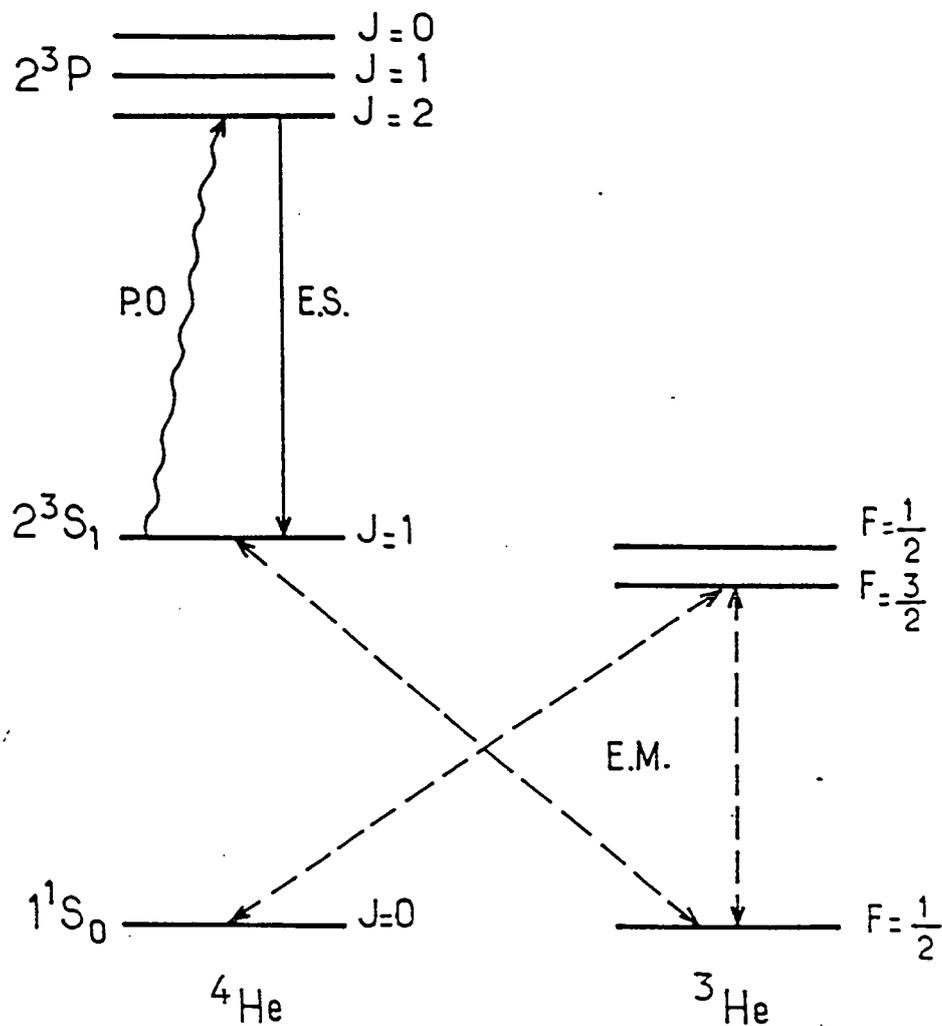


Figure II-1

Quelques niveaux de l'hélium-4 (à gauche) et de l'hélium-3 (à droite). Le moment cinétique de chacun est indiqué. P.O. : transition sur laquelle est effectué le pompage optique. E.S. : émission spontanée ou stimulée par un champ laser. E.M. : collisions d'échange de métastabilité.

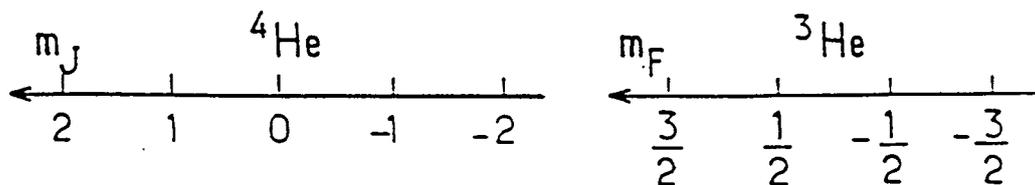
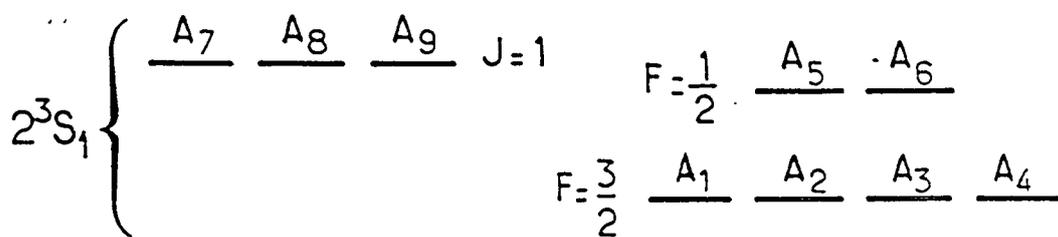
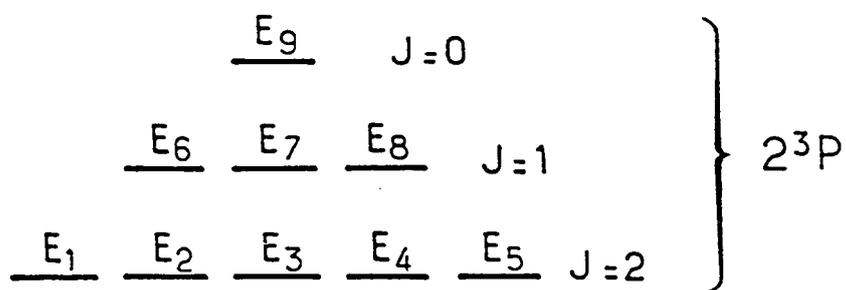


Figure II-2
 Structure et noms des sous-niveaux 2^3S et 2^3P de l'hélium-4 (à gauche) et de l'hélium-3 (à droite).

élastiques et ne modifient que les vitesses des atomes, car le fondamental d'hélium-4 n'a pas de sous-structure. Nous ne considérons donc que les trois autres collisions. La section efficace d'échange de métastabilité σ_e est la même pour toutes ces collisions [Dupont-Roc et al, 71].

Pour décrire le processus d'échange de métastabilité, nous faisons les hypothèses suivantes :

i) Les variables internes (spin) et externes (vitesse) des atomes ne sont pas corrélées. Nous reviendrons sur cette hypothèse par la suite. En effet, le pompage optique effectué par un laser monomode est sélectif en vitesse, il peut donc en résulter des orientations différents pour les diverses classes de vitesses présentes dans le gaz.

ii) Ni le spin nucléaire, ni le spin électronique ne sont affectés par les collisions d'échange de métastabilité, car se sont des processus très rapides. Ceci est une bonne approximation, vérifiée dans [52].

iii) Le taux d'échange de métastabilité ($\sim 10MHz$) est négligeable devant la fréquence de couplage hyperfin entre les deux sous-niveaux du niveau 2^3S_1 ($6,7GHz$). De ce fait, les éléments hors diagonale de la matrice densité entre les deux sous-niveaux hyperfins sont négligeables (approximation séculaire) : les cohérences hyperfines s'amortissent très vite après chaque collision.

Introduisons les matrices densité ρ_g^3 (resp. ρ_m^3) de l'hélium-3 dans l'état fondamental (resp. métastable) et ρ_m^4 de l'hélium-4 dans l'état métastable. Leur évolution est donnée par :

Pour un atome d'hélium-3 dans l'état fondamental :

$$\begin{aligned} \frac{d}{dt} (N_3 \rho_g^3) = & -n_3 N_3 \overline{\sigma_e v_{33}} \rho_g^3 + n_3 N_3 \overline{\sigma_e v_{33}} Tr_e \rho_m^3 \\ & - n_4 N_3 \overline{\sigma_e v_{34}} \rho_g^3 + n_3 N_4 \overline{\sigma_e v_{34}} Tr_e \rho_m^3 \end{aligned} \quad (II-2a)$$

Pour un atome d'hélium-3 dans l'état métastable :

$$\begin{aligned} \frac{d}{dt} (n_3 \rho_m^3) = & -n_3 N_3 \overline{\sigma_e v_{33}} \rho_m^3 + n_3 N_3 \overline{\sigma_e v_{33}} \sum_F P_F (\rho_g^3 \otimes Tr_n \rho_m^3) P_F \\ & - n_3 N_4 \overline{\sigma_e v_{34}} \rho_m^3 + n_4 N_3 \overline{\sigma_e v_{34}} \sum_F P_F (\rho_g^3 \otimes \rho_m^4) P_F \end{aligned} \quad (II-2b)$$

Pour un atome d'hélium-4 dans l'état métastable :

$$\frac{d}{dt} (n_4 \rho_m^4) = -n_4 N_3 \overline{\sigma_e v_{34}} \rho_m^4 + n_3 N_4 \overline{\sigma_e v_{34}} \sum_J P_J Tr_n \rho_m^3 P_J \quad (II-2c)$$

$v_{\gamma\delta}$ est la vitesse relative des atomes : $\overline{\sigma_e v_{\gamma\delta}}$ est la valeur moyenne sur la distribution thermique des vitesses ; Tr_e et Tr_n correspondent à l'opération trace sur les variables de spins électronique ou nucléaire ; P_F et P_J sont les projecteurs sur les sous-niveaux $F = \frac{1}{2}, \frac{3}{2}$ ou $J = 1$ du niveau 2^3S_1 de chaque isotope. Les deux premiers termes de l'équation (II-2b) correspondent à une collision d'échange de métastabilité entre un atome d'hélium-3 métastable et un atome d'hélium-3 dans l'état fondamental. Le premier terme décrit la disparition de l'atome métastable entrant. Le deuxième terme décrit l'apparition du nouveau métastable composé du noyau de l'atome fondamental entrant (ρ_g^3) et du nuage électronique de l'atome métastable entrant ($Tr_n \rho_m^3$). Le troisième terme décrit la perte d'un atome d'hélium-3 métastable par échange de métastabilité avec un atome d'hélium-4

fondamental. Le quatrième terme décrit l'apparition d'un atome d'hélium-3 métastable par échange de métastabilité entre un atome d'hélium-4 métastable et un atome d'hélium-3 fondamental.

L'effet des collisions d'échange de métastabilité sur les populations des niveaux métastables de chaque isotopes (n_3 et n_4) et du niveau fondamental d'hélium-3 (N_3) peut être obtenu en prenant la trace totale de l'une quelconque des équations (II-2) :

$$\frac{dN_3}{dt} = -\frac{dn_3}{dt} = \frac{dn_4}{dt} = (n_3N_4 - n_4N_3) \overline{\sigma_e v_{34}} \quad (II-3)$$

La solution stationnaire est obtenue pour :

$$\frac{n_3}{n_4} = \frac{N_3}{N_4} \quad (II-4)$$

Ce dernier résultat est conséquence de l'égalité des sections efficaces d'échanges de métastabilité ⁽¹⁾. En fait, les processus de création et de destruction d'atomes métastables peuvent tendre à modifier cet équilibre. Ainsi, la diffusion vers les parois, où les métastables sont détruits, se produit avec des taux différents pour les deux isotopes à cause de leur vitesse thermique différente. Dans nos conditions expérimentales typiques, le temps de diffusion à la paroi est de plusieurs ordres de grandeur plus grand que le temps d'échange (de l'ordre de $1ms$ contre environ $0,1\mu s$). De ce fait, l'équation (II-4) reste tout à fait valable, car ce sont les collisions d'échange de métastabilité qui imposent leur équilibre.

Utilisant (II-4), nous supposons les densités de métastable constantes, nous obtenons pour les équations (II-2) la nouvelle forme :

$$\frac{d}{dt} \rho_g^3 = \frac{1}{T_e} (-\rho_g^3 + T \tau_e \rho_m^3) \quad (II-5a)$$

$$\frac{d}{dt} \rho_m^3 = \frac{1}{\tau_e} \left(-\rho_m^3 + \beta \sum_F P_F(\rho_g^3 \otimes \rho_m^3) P_F + (1-\beta) \sum_F P_F(\rho_g^3 \otimes \rho_m^4) P_F \right) \quad (II-5b)$$

$$\frac{d}{dt} \rho_m^4 = \frac{1}{\tau_e} \frac{\alpha}{\mu} \left(-\rho_m^4 + \sum_J P_J(T \tau_n \rho_m^3) P_J \right) \quad (II-5c)$$

avec

$$\frac{1}{T_e} = n_4 \overline{\sigma_e v_{34}} + n_3 \overline{\sigma_e v_{33}} \quad (II-6a)$$

$$\frac{1}{\tau_e} = N_4 \overline{\sigma_e v_{34}} + N_3 \overline{\sigma_e v_{33}} \quad (II-6b)$$

$$\mu = \frac{\overline{\sigma_e v_{33}}}{\overline{\sigma_e v_{34}}} \quad (II-6c)$$

$$\frac{1}{\beta} = 1 + \frac{n_4}{\mu n_3} \quad (II-6d)$$

⁽¹⁾ L'égalité des sections efficaces d'échanges de métastabilité pour les différentes collisions possibles entre les deux isotopes est vraie à température ambiante. Ce n'est plus le cas à basse température, la différence d'énergie entre les deux métastables étant de l'ordre de $10K$.

T_e (resp. τ_e) correspond au temps entre deux collisions d'échange de métastabilité pour un atome dans l'état fondamental (resp. métastable, corrigé d'un facteur $\frac{\mu}{\beta}$ dans le cas de l'hélium-4).

Nous pouvons maintenant écrire les équations d'évolution temporelle des populations des niveaux fondamental d'hélium-3 et métastable d'hélium-3 et d'hélium-4 sous l'effet des collisions d'échange de métastabilité :

$$\frac{d}{dt} M = \frac{1}{T_e} (-M + \langle I_m \rangle) \quad (II-7a)$$

$$1 \leq i \leq 6 : \frac{d}{dt} a_i = \frac{1}{\tau_e} \left[-a_i + \beta \sum_{k=1}^6 (E_{ik}^3 + M F_{ik}^3) a_k + \frac{\beta}{\mu} \sum_{k=7}^9 (E_{ik}^4 + M F_{ik}^4) a_k \right] \quad (II-7b)$$

$$7 \leq i \leq 9 : \frac{d}{dt} a_i = \frac{1}{\tau_e} \left[-\frac{\beta}{\mu} a_i + (1 - \beta) \sum_{k=1}^6 G_{ik}^4 a_k \right] \quad (II-7c)$$

où

$$\langle I_m \rangle = \frac{1}{n_3} \sum_{i=1}^6 \lambda_i a_i \quad (II-8)$$

correspond à la polarisation nucléaire de l'état métastable de l'hélium-3.

Les éléments de matrices E^3, F^3, E^4, F^4 et G^4 sont donnés dans le tableau II-1, ainsi que les coefficients λ_i . L'équation (II-7a) montre que les collisions d'échange de métastabilité transfèrent à l'état fondamental de l'hélium-3 la polarisation nucléaire $\langle I_m \rangle$ de l'état métastable de l'hélium-3.

On vérifie également que les équation (II-7) ont comme solution stationnaire :

$$\frac{a_1}{a_2} = \frac{a_2}{a_3} = \frac{a_3}{a_4} = \frac{1 + M}{1 - M} \quad (II-9a)$$

$$a_2 = a_5 \quad \text{et} \quad a_3 = a_6 \quad (II-9b)$$

$$\frac{a_7}{a_8} = \frac{a_8}{a_9} = \frac{1 + M}{1 - M} \quad (II-9c)$$

$$\frac{a_8}{n_4} = \frac{a_2 + a_3}{n_3} \quad (II-9d)$$

Cela correspond à une dépendance exponentielle en m_F des populations des métastables d'hélium-3 et m_J des populations des métastables d'hélium-4. Ainsi qu'il en est discuté dans [Daniels et al, 71] pour des collisions d'échange de spin entre alcalins différents et pour l'hélium-3, la polarisation du fondamental se comporte pour les métastables comme une "température de spin", fixant ainsi la dépendance en m_F ou m_J de ces populations à être exponentielle. De (II-9a) et (II-9b) on voit que cette "température de spin" est identique pour les deux isotopes. Ce résultat reste valable tant que les collisions d'échange de métastabilité restent le processus le plus rapide pour l'évolution des populations des états métastable. De fait, ce n'est qu'à très forte puissance laser que le délai entre absorptions successives de photons par le même atome peut être plus court que le temps d'échange de métastabilité. Nous reviendrons donc sur cette discussion au § II-1-3 après avoir explicité l'effet du champ laser sur les atomes.

Tableau II-1

Matrices E^3 , E^4 , F^3 , F^4 , G^4 et λ intervenant dans l'évolution temporelle des populations de l'hélium-3 et de l'hélium-4.

$$E^3 = \frac{1}{18} \begin{pmatrix} 9 & 3 & 0 & 0 & 6 & 0 \\ 3 & 5 & 4 & 0 & 4 & 2 \\ 0 & 4 & 5 & 3 & 2 & 4 \\ 0 & 0 & 3 & 9 & 0 & 6 \\ 6 & 4 & 2 & 0 & 5 & 1 \\ 0 & 2 & 4 & 6 & 1 & 5 \end{pmatrix}$$

$$E^4 = \frac{1}{18} \begin{pmatrix} 9 & 0 & 0 \\ 3 & 6 & 0 \\ 0 & 6 & 3 \\ 0 & 0 & 9 \\ 6 & 3 & 0 \\ 0 & 3 & 6 \end{pmatrix}$$

$$F^3 = \frac{1}{18} \begin{pmatrix} 9 & 3 & 0 & 0 & 6 & 0 \\ -3 & 3 & 4 & 0 & 0 & 2 \\ 0 & -4 & -3 & 3 & -2 & 0 \\ 0 & 0 & -3 & -9 & 0 & -6 \\ -6 & 0 & 2 & 0 & -3 & 1 \\ 0 & -2 & 0 & 6 & -1 & 3 \end{pmatrix}$$

$$F^4 = \frac{1}{18} \begin{pmatrix} 9 & 0 & 0 \\ -3 & 6 & 0 \\ 0 & -6 & 3 \\ 0 & 0 & -9 \\ -6 & 3 & 0 \\ 0 & -3 & 6 \end{pmatrix}$$

$$G^4 = \frac{1}{18} \begin{pmatrix} 18 & 6 & 0 & 0 & 12 & 0 \\ 0 & 12 & 12 & 0 & 6 & 6 \\ 0 & 0 & 6 & 18 & 0 & 12 \end{pmatrix}$$

$$\lambda = \frac{1}{3} (3 \quad 1 \quad -1 \quad -3 \quad -1 \quad 1)$$

II-1-3) Couplage des atomes avec le champ laser

Pour calculer l'effet du champ laser sur les populations des niveaux 2^3S_1 et 2^3P de l'hélium-4, nous utilisons le taux d'absorption $\frac{1}{\tau_{ij}}$ par un atome d'un photon laser sur la transition $A_i E_j$. Ce taux a été calculé dans la référence [Nacher et al, 85] et peut être mis sous la forme :

$$\frac{1}{\tau_{ij}} = \gamma_k T_{ij} \quad (II - 10)$$

avec

$$\gamma_k = \frac{4\pi\alpha f}{m\omega} \frac{I}{S} \cdot \frac{(\Gamma'/2)^2}{(\Gamma'/2)^2 + (\omega - \omega_k)^2} \quad (II - 11a)$$

$$T_{ij} = \frac{2m\omega}{\hbar f} |\langle A_i | e_{\lambda} \cdot \mathbf{R} | E_j \rangle|^2 \quad (II - 11b)$$

$\alpha = \frac{e^2}{\hbar c} = \frac{1}{137}$: constante de structure fine ; $f = 0,5391$ est la force d'oscillateur totale de la transition $2^3S \rightarrow 2^3P$ [Wiese et al, 66] et est identique pour l'hélium-3 et l'hélium-4 ; $m = 0,91.10^{-30} kg$: masse de l'électron ; ω : pulsation du laser ; I : puissance lumineuse du laser ; S : surface du faisceau laser ; $\Gamma' = 1,0220.10^{-7} s^{-1}$: taux de désexcitation spontanée de l'état 2^3P ; ω_k : pulsation propre de l'atome considéré sur la transition $A_i E_j$; e_{λ} : vecteur polarisation du faisceau laser ; \mathbf{R} : opérateur position (provenant de l'opérateur dipolaire électrique). γ_k dépend ainsi de toutes les caractéristiques du faisceau laser (géométriques et spectrales) et T_{ij} (sans dimension) caractérise l'intensité de la transition D_k entre les sous-niveaux A_i et E_j de l'hélium-4 ou de la transition C_k entre les sous-niveaux A_i et B_j de l'hélium-3. Ces matrices T_{ij} sont reportées dans le tableau (II-2).

Nous devons maintenant revenir sur l'hypothèse faite lors de l'étude de l'échange de métastabilité (§ II-1-2), à savoir l'absence de corrélation entre variables internes (spin) et externes (vitesse) des atomes métastables. En effet, le caractère sélectif en vitesse de l'excitation laser tend à créer de telles corrélations alors que les collisions les détruisent en permanence par redistribution des atomes dans les classes de vitesses ou par dépoliarisation. Supposant, d'après [54], que la section efficace d'échange de métastabilité ne dépend pas de la vitesse, de telles corrélations n'existent pas pour les métastables de l'isotope non-couplé au laser. Considérons le cas où le pompage optique est effectué sur l'hélium-4

Les atomes d'hélium-4 métastables subissent principalement deux types de collisions :

- i) Collision avec des atomes d'hélium-4 dans l'état fondamental ou des collisions sans échange de métastabilité avec des atomes d'hélium-3. Ces collisions ont un effet négligeable sur le spin électronique S des atomes métastables. De fait, c'est une bonne approximation de les considérer comme des collisions purement de changement de vitesse. Ces collisions tendent donc à égaliser les orientations de toutes les classes de vitesses à la valeur imposée par le laser aux atomes en résonance avec lui. Ces collisions se produisent essentiellement pour de grands paramètres d'impact, c'est-à-dire des changements de vitesse petits.
- ii) Collisions d'échange de métastabilité entre un atome d'hélium-4 métastable et un atome d'hélium-3 dans l'état fondamental ou vice-versa. Dans le premier cas, le métastable d'hélium-4 disparaît, dans le second, son orientation électronique dépend de celle portée par le métastable d'hélium-3 avant la collision. Ces collisions tendent à thermaliser l'orientation électronique des atomes à la polarisation nucléaire des atomes d'hélium-3 dans l'état fondamental (cf. § II-1-2). Ces collisions correspondent à des changements de la vitesse des atome importants (l'échange de métastabilité se produisant pour des

Tableau II-2

Eléments des matrices de transition T_{ij} pour chacune des trois raies D_0 , D_1 et D_2 de l'hélium-4. Chaque colonne correspond à un sous niveau A_i de l'état 2^3S_1 , chaque ligne à un sous niveau E_j de l'état 2^3P . La polarisation de la lumière de la transition (σ^+ , π ou σ^-) est également indiquée pour chaque coefficient T_{ij} .

Transition D_0

j	i	7	8	9
9		$\frac{1}{3}$ (σ^+)	$\frac{1}{3}$ (π)	$\frac{1}{3}$ (σ^-)

Transition D_1

j	i	7	8	9
6		$\frac{1}{2}$ (π)	$\frac{1}{2}$ (σ^+)	
7		$\frac{1}{2}$ (σ^-)	0 (π)	$\frac{1}{2}$ (σ^+)
8			$\frac{1}{2}$ (σ^-)	$\frac{1}{2}$ (π)

Transition D_2

j	i	7	8	9
1		1 (σ^+)		
2		$\frac{1}{2}$ (π)	$\frac{1}{2}$ (σ^+)	
3		$\frac{1}{6}$ (σ^-)	$\frac{2}{3}$ (π)	$\frac{1}{6}$ (σ^+)
4			$\frac{1}{2}$ (σ^-)	$\frac{1}{2}$ (π)
5				1 (σ^-)

recouvrements non-négligeable des fonctions d'ondes des deux atomes, c'est-à-dire pour des paramètres d'impact petits).

Donc, suivant l'importance relative de ces deux types de collisions, chaque classe de vitesse des atomes d'hélium-4 métastable peut être couplée plus ou moins préférentiellement à l'orientation électronique imposée par le laser (collisions (i) dominantes, vitesse peu différente de la classe en résonance) ou par la polarisation nucléaire de l'hélium-3 dans l'état fondamental (collisions (ii) dominantes, vitesse très différente de la classe en résonance).

Pour tenir compte au moins partiellement de ce phénomène, nous reprenons un modèle simple déjà développé pour l'hélium-3 pur [Nacher et al, 85]. Pour cela, les atomes d'hélium-4 métastable sont séparés en deux groupes. Le premier a une densité volumique totale n_4^* correspondant à une population des trois sous-niveaux a_7^* , a_8^* et a_9^* . Il est supposé être effectivement et uniformément orienté par le laser. Ce groupe comprend les atomes en résonance directe avec le laser et ceux dont la vitesse diffère suffisamment peu de celle des premiers pour leur être fortement couplé par des collisions de changement de vitesse non-dépolarisantes. Le deuxième groupe, composé des atomes restant, est supposé n'interagir en aucune manière avec le laser, son seul rôle étant de contribuer par leur relaxatin propre éventuelle à la relaxation nucléaire dans l'état fondamental de l'hélium-3 via les collisions d'échange de métastabilité.

Ce procédé de dichotomisation des populations des métastables d'hélium-4, bien qu'assez sommaire, à l'avantage de décrire les phénomènes de corrélations entre différentes classes de vitesses à l'aide d'un seul paramètre x , défini par :

$$x = \frac{n_4^*}{n_4} \quad (0 \leq x \leq 1) \quad (II - 12)$$

Comme dans le cas de l'hélium-3 pur [Nacher et al, 85], nous devons alors remplacer l'équation (II-10) par une probabilité d'absorption moyenne pour l'un des atomes du groupe des métastables effectivement couplés au laser (n_4^*) :

$$\frac{1}{\tau_{ij}} = \bar{\gamma}_k T_{ij} \quad (II - 13)$$

avec

$$\bar{\gamma}_k = \sqrt{\pi} \frac{I}{S} \frac{\alpha f}{m\omega D} \frac{1}{x} e^{-(\omega - \omega_k^0)^2 / (2\pi D)^2} \quad (II - 14)$$

où D est la largeur Doppler de la transition et ω_k^0 la pulsation de résonance à vitesse nulle de la transition D_k . Les autres paramètres sont donnés avec la formule (II-11). Le calcul de $\bar{\gamma}_k$ est détaillé dans la référence [Nacher et al, 85], mais la formule (B2) de l'appendice B est à corriger par notre formule II-14 (erreur d'un facteur $\sqrt{2}$ dans l'article).

Les calculs d'échange de métastabilité restent valables : il suffit de considérer deux groupes différents pour les métastables d'hélium-4 (a^* et $(a - a^*)$) au lieu de un seul. Les équations (II-7b) et (II-7c) deviennent alors :

$$1 \leq i \leq 6 : \frac{d}{dt} a_i = \frac{1}{\tau_e} \left[-a_i + \beta \sum_{k=1}^6 (E_{ik}^3 + M F_{ik}^3) a_k \right. \\ \left. + \frac{\beta}{\mu} \sum_{k=7}^9 (E_{ik}^4 + M F_{ik}^4) a_k^* \right]$$

$$+ \frac{\beta}{\mu} \sum_{k=7}^9 (E_{ik}^4 + MF_{ik}^4)(a_k - a_k^*) \Big] \quad (II - 15a)$$

$$7 \leq i \leq 9 : \frac{d}{dt} a_i^* = \frac{1}{\tau_e} \left[-\frac{\beta}{\mu} a_i^* + x(1-\beta) \sum_{k=1}^6 G_{ik}^4 a_k \right] \quad (II - 15b)$$

$$7 \leq i \leq 9 : \frac{d}{dt} (a_i - a_i^*) = \frac{1}{\tau_e} \left[-\frac{\beta}{\mu} (a_i - a_i^*) + (1-x)(1-\beta) \sum_{k=1}^6 G_{ik}^4 a_k \right] \quad (II - 15c)$$

L'effet des photons laser sur le groupe n_4^* s'écrit :

$$7 \leq i \leq 9 : \frac{d}{dt} a_i^* = \frac{1}{\tau} \sum_{j=1}^9 T_{ij} e_j - \sum_{j=1}^9 \frac{1}{\tau_{ij}} (a_i^* - e_j) \quad (II - 16a)$$

$$\frac{d}{dt} e_j = -\frac{e_j}{\tau} + \sum_{j=7}^9 \frac{1}{\tau_{ij}} (e_j - a_i^*) \quad (II - 16b)$$

τ est la durée de vie de l'état excité 2^3P . Ces équations décrivent les processus d'absorption et d'émission induite (termes en $\frac{1}{\tau_{ij}}$) et d'émission spontanée (termes en $\frac{1}{\tau}$).

Ceci nous permet maintenant d'évaluer les limites de validité de la notion de température de spin (cf. § II-1-2) pour les atomes dans l'état métastable en équilibre avec la polarisation nucléaire de l'hélium-3 dans l'état fondamental. Pour être à l'équilibre thermique, l'évolution temporelle des populations de métastables doit être dominée par l'échange de métastabilité (τ_e). Pour les métastables d'hélium-3 (n_3) et les métastables d'hélium-4 non-couplés au laser ($n_4 - n_4^*$), ces conditions sont toujours vérifiées dans nos situations expérimentales typiques. En revanche, le taux d'absorption ($\frac{1}{\tau_{ij}}$) peut devenir plus court que $\frac{1}{\tau_e}$ (pour une puissance laser incidente de $1W$ et avec $\frac{n_4^*}{n_4} = 0,1$; $\tau_{ij} \sim \tau_e$), si bien que la fraction des métastables d'hélium-4 couplée au laser (n_4^*) n'est pas forcément à "l'équilibre thermique" avec le fondamental.

II-1-4) Relaxations

Jusqu'à présent, nous n'avons considéré que les collisions d'échange de métastabilité et le couplage des atomes avec les photons du laser. Ces deux processus ont pu être décrits exactement à partir d'un point de vue microscopique. Mais d'autres types de collisions existent et sont susceptibles d'entraîner une dépolarisation des divers niveaux considérés (fondamental hélium-3 ; métastable hélium-3 et hélium-4 ; état excité 2^3P hélium-4). Nous nous proposons maintenant de décrire ces collisions et les autres processus dépolarisants (gradients magnétiques, ...) par des temps de relaxation pour chaque population concernée (atomes dans l'état fondamental, métastable ou excité (2^3P)).

La polarisation nucléaire M du fondamental d'hélium-3 peut être détruite par des gradients de champ magnétique dans le gaz ou sur les parois à cause des impuretés magnétiques s'y trouvant. La décharge utilisée pour créer une densité de métastables non nulle porte les atomes (principalement dans l'état fondamental) dans des états excités. Par suite du couplage hyperfin dans ces états, tout ou partie du spin nucléaire initial de l'atome est transféré au cortège électronique. L'émission spontanée à partir de ces niveaux créent alors un flux de photons polarisés hors du gaz. Les atomes qui retombent dans l'état fondamental après cette cascade radiative sont donc non polarisés. De même, les collisions d'atomes métastables avec la paroi ou des impuretés peuvent ne pas conserver

du spin nucléaire et être ainsi source d'atomes dans l'état fondamental non polarisés. Nous décrivons phénoménologiquement ces processus de relaxation et les autres possibles par un temps de relaxation T_r , supposé indépendant de la polarisation nucléaire M :

$$\frac{d}{dt} M = -\frac{1}{T_r} M \quad (II - 17)$$

De même, les atomes métastables issus de la décharge (compensant ainsi les pertes sur les parois) sont également dépolarisés et donc source d'une dépolarisation de cette population d'atomes. De plus, des collisions de métastables avec d'autres espèces présentes dans le plasma de la décharge (ions, autres métastables, ...) peuvent transférer ces atomes d'un état A_i à un état A_j . Comme pour l'état fondamental, nous décrivons ces processus de relaxation par un temps de relaxation, pouvant être différent pour l'hélium-3 ($\tau_{r,3}$) et l'hélium-4 ($\tau_{r,4}$) :

$$1 \leq i \leq 6 : \frac{d}{dt} a_i = \frac{1}{\tau_{r,3}} \left(\sum_{k=1}^6 \frac{a_k}{6} - a_i \right) \quad (II - 18a)$$

$$7 \leq i \leq 9 : \frac{d}{dt} a_i^* = \frac{1}{\tau_{r,4}} \left(\sum_{k=7}^9 \frac{a_k^*}{3} - a_i^* \right) \quad (II - 18b)$$

$$7 \leq i \leq 9 : \frac{d}{dt} (a_i - a_i^*) = \frac{1}{\tau_{r,4}} \left(\sum_{k=7}^9 \frac{a_k - a_k^*}{3} - (a_i - a_i^*) \right) \quad (II - 18c)$$

Pour les régimes de décharge faible, correspondant aux conditions expérimentales optimales en terme de polarisation nucléaire obtenue, le processus dominant de relaxation des métastables est la collision avec les parois. Les temps de relaxation $\tau_{r,4}$ et $\tau_{r,3}$ deviennent dans ce cas comparables aux temps de diffusion vers la paroi ($\tau_{d,4}$ et $\tau_{d,3}$). On a alors :

$$\frac{\tau_{r,4}}{\tau_{r,3}} \simeq \frac{\tau_{d,4}}{\tau_{d,3}} = \frac{(D_4)^{-1}}{(D_3)^{-1}} = \frac{\sqrt{\frac{12}{7}} N_3 + \sqrt{2} N_4}{\sqrt{\frac{3}{2}} N_3 + \sqrt{\frac{12}{7}} N_4} \quad (II - 19)$$

De fait, suivant la valeur de $\frac{N_3}{N_4}$ le rapport $\frac{\tau_{d,4}}{\tau_{d,3}}$ varie entre 1,069 et 1,080. D_3 et D_4 sont les coefficients de diffusion de l'hélium-3 et de l'hélium-4 dans le mélange. Les différents facteurs numériques proviennent des trois valeurs des masses réduites pour les trois types de collisions possibles. Les temps de relaxation, pour des décharges faibles, pour les deux isotopes sont donc très peu différents (environ 7%).

Globalement, la relaxation de la polarisation nucléaire dans l'état fondamental a deux origines : la relaxation décrite par T_r et celle ramenée des niveaux métastables (τ_r) par les collisions d'échange de métastabilité [Dupont-Roc et al, 77]. Ainsi, le temps de relaxation global de la polarisation nucléaire T_1 en présence de décharge est relié à T_r et τ_r par la relation :

$$\frac{1}{T_1} = \frac{1}{T_r} + \frac{11}{3} \frac{n_3}{N_3} \frac{1}{\tau_{r,3}} + \frac{17}{6} \frac{n_4}{N_3} \frac{1}{\tau_{r,4}} \quad (II - 20)$$

T_1 est le temps de relaxation accessible directement expérimentalement.

Les atomes dans l'état 2^3P peuvent subir le même genre de collisions que les métastables et être ainsi transférés d'un état E_i à un état E_j . On s'attend à ce que ce taux de dépolarisation

soit d'autant plus élevé que la pression dans la cellule est plus grande. Pour décrire l'effet de ces collisions nous introduisons un autre temps de relaxation moyen τ_{dep} :

$$\frac{d}{dt} e_j = \frac{1}{\tau_{dep}} \left(\sum_{\ell=1}^9 \frac{e_\ell}{9} - e_j \right) \quad (II - 21)$$

Contrairement aux métastables, les atomes dans l'état excité ne sont pas créés par la décharge. De plus, ils subissent principalement des collisions avec les atomes dans l'état fondamental. Aussi, le temps de relaxation τ_{dep} ne peut dépendre que faiblement de l'intensité de la décharge. En revanche, il diminue quand la pression augmente, le taux de collisions avec les atomes fondamentaux augmentant avec la pression.

D'autre part, l'orientation électronique du métastable d'hélium-4 ne dépend pas de la valeur de τ_{dep} si le pompage optique est effectué sur la transition D_0 de l'hélium-4. En effet, la raie D_0 couple le niveau métastable au sous-niveau 2^3P_0 de l'état excité qui ne présente pas de sous-structure étant de moment cinétique J nul. La dépolarisation dans les sous-niveaux 2^3P étant décrite isotropiquement (et l'émission spontanée vers le niveau métastable également), elle n'induit pas de modification de l'orientation électronique du métastable d'hélium-4 par rapport à un cas hypothétique sans dépolarisation. Ainsi, tous les résultats en pompage optique sur D_0 sont indépendants de la valeur de τ_{dep} . Ce résultat est bien sûr valable uniquement pour la transition D_0 de l'hélium-4, les sous-niveaux de l'état 2^3P atteint par les autres raies de l'hélium-4 ou par celles de l'hélium-3 présentant des sous-structures. L'effet de dépolarisation dans l'état excité sur l'orientation électronique des atomes métastables a déjà été étudié dans l'hélium-4 pur. Le résultat majeur est que le pompage optique de la transition D_2 y est très sensible. Ce fait est tout à fait bien décrit par notre modèle, confirmant que cette raie ne permet pas d'obtenir de fortes polarisations nucléaires à cause de cette caractéristique (sauf pour les très faibles pression ou la relaxation devient négligeable). Comme à température ambiante D_2 et D_1 ne sont pas résolues spectralement, le pompage optique sur D_1 ne peut pas fournir de forte polarisation car inévitablement on exciterait également la transition D_2 . Pour cette raison, nous avons limité notre étude des mélanges au seul cas du pompage optique sur la transition D_0 de l'hélium-4. Pour voir concrètement l'effet du taux de dépolarisation de l'état excité dans l'hélium-3 pur, se reporter à [Nacher et al, 85]. Nous évaluerons expérimentalement sa valeur pour une cellule d'hélium-3 pur dans le régime des faibles puissances laser (cf. § II-5-3).

II-1-5) Equations d'évolution globales et résolution

Regroupant les équations (II-7a) (II-15) à (II-18) et (II-21), nous obtenons comme équations d'évolution pour les diverses populations des niveaux considérés :

$$\frac{d}{dt} M = -\frac{M}{T_r} + \frac{1}{T_e} \left[-M + \frac{1}{n_3} \sum_{i=1}^6 \lambda_i a_i \right] \quad (II - 22a)$$

$$\begin{aligned} 1 \leq i \leq 6 : \frac{d}{dt} a_i = & \frac{1}{\tau_{r,3}} \left(\frac{n_3}{6} - a_i \right) + \frac{1}{\tau_e} \left[-a_i + \alpha \sum_{k=1}^6 (E_{ik}^3 + M F_{ik}^3) a_k \right] \\ & + \frac{\beta}{\mu} \sum_{k=7}^9 (E_{ik}^4 + M F_{ik}^4) a_k^* \\ & + \frac{\beta}{\mu} \sum_{k=7}^9 (E_{ik}^4 + M F_{ik}^4) (a_k - a_k^*) \end{aligned} \quad (II - 22b)$$

$$\begin{aligned}
7 \leq i \leq 9 : \frac{d}{dt} a_i^* &= \frac{1}{\tau_{r,4}} \left(x \frac{n_4}{3} - a_i^* \right) \\
&+ \frac{1}{\tau_e} \left[-\frac{\beta}{\mu} a_i^* + x(1-\beta) \sum_{k=1}^6 G_{ik}^4 a_k \right] \\
&+ \frac{1}{\tau} \sum_{j=1}^9 T_{ij} e_j + \sum_{j=1}^9 \frac{1}{\tau_{ij}} (e_j - a_i^*) \quad (II-22c)
\end{aligned}$$

$$\begin{aligned}
7 \leq i \leq 9 : \frac{d}{dt} (a_i - a_i^*) &= \frac{1}{\tau_{r,4}} \left((1-x) \frac{n_4}{3} - a_i^* \right) \\
&+ \frac{1}{\tau_e} \left[-\frac{\beta}{\mu} (a_i - a_i^*) + (1-x)(1-\beta) \sum_{k=1}^6 G_{ik}^4 a_k \right] \quad (II-22d)
\end{aligned}$$

$$\begin{aligned}
1 \leq j \leq 9 : \frac{d}{dt} e_j &= \frac{1}{\tau_{dep}} \left(\sum_{\ell=1}^9 \frac{e_\ell}{9} - e_j \right) \\
&- \frac{e_j}{\tau} + \sum_{i=7}^9 \frac{1}{\tau_{ij}} (e_j - a_i^*) \quad (II-22e)
\end{aligned}$$

Les populations des niveaux vérifient :

$$\sum_{i=1}^6 a_i = n_3 \quad (II-23a)$$

$$\sum_{i=7}^9 a_i^* = n_4^* = x n_4 \quad (II-23b)$$

$$\sum_{i=7}^9 (a_i - a_i^*) = n_4 - n_4^* = (1-x) n_4 \quad (II-23c)$$

Ces équations sont non-linéaires à cause des termes d'échanges de métastabilité. Elles peuvent être linéarisées pour les faibles valeurs de la polarisation nucléaire M . On obtient alors directement la valeur de M (en %) en fonction des paramètres expérimentaux pour la transition D_0 :

$$M = T_1 \frac{n_4}{N_4} \cdot \frac{10^6}{1973} \frac{n_4}{n_3} \cdot I \quad (II-24)$$

pour une puissance laser incidente I (en mW) et une surface de $18cm^2$ ($\varnothing = 5cm$). Comme annoncé à la fin du paragraphe II-1-4), le résultat ne dépend pas du taux de dépolarisation dans l'état excité $\left(\frac{1}{\tau_{dep}}\right)$. Le rapport $x = \frac{n_4^*}{n_4}$ ne joue aucun rôle dans le calcul de M : tout étant linéaire, si deux fois moins de métastables d'hélium-4 sont effectivement couplés au laser, ils reçoivent deux fois plus de photons chacun. Par contre, x joue un rôle important pour la valeur de M à partir de laquelle on sort du régime linéaire : le taux de pompage par atome augmentant quand x diminue

(à puissance laser donnée), les effets non-linéaires interviennent pour des valeurs plus faibles de M (cf. § II-5-2).

Nous avons également calculé à partir des équations de [Nacher et al, 85] la polarisation nucléaire en régime linéaire pour le gaz d'hélium-3 pur, et ce pour deux raies : C_8 et C_9 :

pour la transition C_8 :

$$M = T_1 \frac{n_3}{N_3} \frac{10^6}{5670} \frac{\frac{\tau_{dep}}{\tau} + 0,5596}{\frac{\tau_{dep}}{\tau} + 1} I \quad (II - 25a)$$

pour la transition C_9 :

$$M = T_1 \frac{n_3}{N_3} \frac{10^6}{3776} \frac{\frac{\tau_{dep}}{\tau} + 1,1869}{\frac{\tau_{dep}}{\tau} + 1} I \quad (II - 25b)$$

où T_1 est donné par (II-20) en faisant $n_4 = 0$. Comme attendu, ces résultats dans l'hélium-3 pur dépendent du taux de dépolarisation (τ_{dep}) de l'état excité (comparé au taux d'émission spontanée $\frac{1}{\tau}$).

Dans le cas général, les équations (II-22) sont résolues numériquement. Pour simplifier les calculs, nous utilisons le fait que le temps caractéristique d'évolution de M (T_r ou T_e , ordre de grandeur : quelques secondes ou plus) est très long comparé au temps caractéristiques d'évolution des populations des états métastables (τ_r ou τ_e , ordre de grandeur : quelques microsecondes ou moins) et excités ($\tau = 0,1\mu s$). Ainsi, l'évolution des états excités et métastables et celle de la polarisation nucléaire M sont découplées, les premiers atteignant leur état stationnaire sans que M ait le temps d'évoluer. Cela est dû à la grande différence (six ordres de grandeur) entre le nombre de métastables et le nombre d'atomes dans l'état fondamental. Ainsi, ne nous intéressant qu'à l'état stationnaire des populations de métastables, nous fixons M comme étant un paramètre dans l'équation (II-22b). Les a_i, a_i^* et e_j sont alors simplement solutions des équations linéaires déduites de (II-22b) à (II-22e) où l'on a annulé les termes différentiels. On obtient ainsi un système de 21 équations et 21 variables. Utilisant (II-23), le système se réduit à 18 équations linéaires et 18 inconnues indépendantes, système aisément inversible numériquement. On peut alors reporter les valeurs des populations des métastables dans (II-22a) pour en déduire la dérivée temporelle $\frac{dM}{dt}$ pour la valeur de M choisie. En ajustant M , on cherche à annuler la valeur de $\frac{dM}{dt}$, trouvant ainsi la polarisation nucléaire de l'état stationnaire. Connaissant $\frac{dM}{dt}$, on peut également calculer la construction temporelle de M ainsi que la dépendance du temps de pompage avec la polarisation nucléaire M ($\frac{d}{dt}[\ln(M(\infty) - M(t))]$).

II-2) Valeurs de quelques paramètres

Nous avons réalisé les expériences de pompage optique sur des cellules scellées cylindriques ($\varnothing = 5cm, \ell = 5cm$) remplies avec le gaz souhaité : nous pouvons fixer arbitrairement les quantités d'hélium-3 et d'hélium-4. De fait, la gamme de pression accessible pour le pompage optique l'hélium-3 pur s'étend approximativement d'une fraction de torr à une dizaine de torr. Nous avons effectué les mesures expérimentales sur des mélanges de pression totale comprise dans cette gamme, avec un rapport de pression hélium-3/hélium-4 en général de 1/3. Pour que la durée de vie des atomes métastables soit limitée principalement par leur temps de diffusion vers la paroi, le taux d'impureté dans le gaz doit être inférieur à 10^{-6} [], ce qui nécessite un grand soin lors du remplissage des cellules. Cette technique est bien maîtrisée au laboratoire.

II-2-1) Temps d'échange de métastabilité

Le temps d'échange de métastabilité pour un métastable (τ_e) a été mesuré dans l'hélium-3 pur [Dupont-Roc et al, 71] et vaut : $\tau = 2,0 \cdot 10^{-7} s$ à 1 torr. D'après les formules (II-6b) et (II-6c), on obtient :

$$\frac{1}{\tau_e} = (N_3 + N_4) \overline{\sigma_e v_{33}} \left(1 + \frac{N_4}{N_3 + N_4} (\mu - 1) \right) \quad (II - 26)$$

Comme $\mu \simeq 1,07$, le deuxième terme est une correction d'au plus 7%, et c'est donc une bonne approximation de prendre, quelque soit le rapport hélium-3/hélium-4 :

$$\tau_e = 2 \cdot 10^{-7} s \cdot torr^{-1} \quad (II - 27)$$

en considérant la pression totale du mélange.

De même, on obtient pour le temps d'échange de métastabilité pour un atome dans l'état fondamental (d'après les formules (II-6a), (II-6b) et (II-4)) :

$$\frac{T_e}{\tau_e} = \frac{N_3 + N_4}{n_3 + n_4} = \frac{N_3}{n_3} = \frac{N_4}{n_4} \quad (II - 28)$$

Dans nos conditions expérimentales typiques, $\frac{n}{N} \sim 10^{-6}$.

II-2-2) Temps de relaxation

Nous n'avons pas accès directement aux temps de relaxation T_r et τ_r définis pour le fondamental et le métastable hors collisions d'échanges de métastabilité (cf. § II-1-4). En revanche, nous avons accès expérimentalement au temps de relaxation global de la polarisation nucléaire T_1 défini par la relation II-20. Il peut être mesuré simplement, après avoir polarisé le gaz puis coupé le laser de pompe, en mesurant à différents instants la polarisation nucléaire soit par R.M.N., soit par détection optique. T_1 est compris entre quelques dizaines et quelques centaines de secondes, suivant la pression du gaz et le niveau de la décharge (plus la décharge est forte, plus T_1 est court).

Nous admettrons pour nos calculs, d'après la formule (II-19) et ses remarques, que :

$$\tau_{r,4} = \tau_{r,3} = \tau_r \quad (II - 29)$$

Le taux de création de métastable par la décharge est égal au taux de destruction sur les parois de la cellule et a donc pour temps caractéristique le temps de diffusion τ_d vers la paroi des métastables ($\tau_d = 1,5 ms$ pour une pression de 1 torr dans un cylindre de $\varnothing = 5 cm$ et $\ell = 5 cm$). Les métastables créés par la décharge sont partiellement ou totalement dépolarisés par la cascade radiative, imposant ainsi un temps de relaxation de l'ordre de grandeur de τ_d . Ce temps de diffusion est une limite supérieure à τ_r , d'autres processus de relaxation pouvant exister (cf. § II-1-4). Inversement, la formule II-20 nous montre que τ_r ne peut être inférieur à une valeur limite τ_r^0 obtenu pour $T_r = \infty$:

$$\tau_r^0 = \frac{11}{3} \frac{n_3}{N_3} T_1 \left(1 + \frac{17}{22} \frac{n_4}{n_3} \right) \quad (II - 30)$$

Dans nos conditions expérimentales typiques, τ_r^0 est légèrement inférieur à τ_d : pour une cellule contenant 0,2 torr d'hélium-3 et 0,6 torr d'hélium-4, $\tau_d = 1,2 ms$ et $\tau_r^0 = 0,8 ms$ (avec $T_1 = 130 s$ et $\frac{n}{N} = 0,5 \cdot 10^{-6}$).

Pour les calculs, nous choisissons donc τ_r dans la fourchette donnée par τ_d et τ_r^0 et ajustons T_r pour obtenir une valeur de T_1 conforme à la valeur expérimentale. Nous verrons que le résultat est en fait peu sensible aux valeurs de τ_r et T_r à condition qu'elles soient reliées par la formule II-20.

II-3) Décharge et densité de métastables

Les métastables sont créés par une décharge radiofréquence. Plus une décharge est intense, plus la densité de métastables augmente ainsi que le taux de relaxation (cf. § II-1-4). Pour avoir un pompage optique efficace, il faut trouver l'optimum entre ces deux effets antagonistes. Dans nos conditions expérimentales, les meilleurs résultats ont toujours été obtenus pour des décharges continues à la limite du seuil d'extinction. Nous n'avons pas cherché à changer la fréquence de la radiofréquence (fixée à $6MHz$) mais cet effet est étudié par le groupe de Caltech.

Nous avons déterminé la densité de métastables pour une cellule donnée et une décharge donnée par la mesure de l'absorption d'un faisceau laser sonde monomode, accordé sur la transition D_0 dans le cas de mélanges hélium-3/hélium-4, ou sur la transition C_9 dans le cas de l'hélium-3 pur. Ces transitions sont choisies pour avoir la plus grande force d'oscillateur possible tout en étant bien séparées spectralement des autres raies.

Le principe de la détermination de la densité de métastables est de mesurer la puissance du laser sonde transmise et sa variation lorsqu'on éteint la décharge. On en déduit ainsi l'absorption due aux métastables et leur densité. Pour réaliser ces mesures, le laser sonde doit donc être stable en amplitude, monomode pour être sûr que toute la puissance laser est en résonance avec les atomes, et accordable sur la raie d'hélium désirée. Le faisceau doit également être peu puissant pour éviter de perturber l'équilibre des populations de métastables.

II-3-1) Laser monomode et mesures d'absorption

Le laser produisant le faisceau monomode à $1,083\mu m$, représenté sur la figure II-3, a été inspiré des travaux de J. Hamel à Caen [Aubert et al, 89]. Il est composé d'un barreau de LNA (cf. chapitre I) de $1cm$ de long (taillé selon l'axe c) pompé longitudinalement par un réseau de diodes laser émettant à $\lambda = 797nm$ (bande d'absorption du Nd^{3+} dans le LNA). Le faisceau du réseau de diodes laser est collecté par un objectif de grande ouverture numérique (L_c), l'astigmatisme et la forme du faisceau étant corrigé par deux prismes anamorphoseurs (P.A.). Le faisceau est ensuite focalisé sur le barreau par une lentille (L_f). La face d'entrée du barreau est traitée pour avoir un coefficient de réflexion à $1,08\mu m$ le plus grand possible et sa face de sortie est traitée antireflet. La cavité laser est fermée par un miroir plan (M) de transmission $T \sim 2\%$ à $1,08\mu m$. La stabilité de la cavité est assurée par une lentille (L_s). L'accord et l'affinement spectral sont obtenus à l'aide d'un filtre de Lyot (F.L.) à incidence de Brewster (épaisseur $6mm$) et d'un étalon solide (E) non-traité (épaisseur $1mm$). Une puissance de l'ordre du milliwatt est obtenue avec un mode transversal TEM_{00} et monomode longitudinal. Cette puissance est suffisante pour pouvoir faire les mesures de densité de métastable sans pour autant perturber le système en faisant du pompage optique sur la transition sondée. Aussi nous n'avons pas cherché à optimiser plus en détail le laser pour qu'il soit plus puissant. Néanmoins, la puissance pourrait être accrue tout en conservant le caractère monomode de l'émission en augmentant par exemple le coefficient de réflexion des faces de l'étalon par un traitement optique approprié.

Ce laser est accordable sur toutes les raies de la transition $2^3S - 2^3P$ de l'hélium-3 et de l'hélium-4. L'accord en fréquence se fait par inclinaison de l'étalon et ajustement du filtre de Lyot.

Du fait que l'absorption est faible (inférieure ou de l'ordre de 5%), et du fait des instabilités du laser, on évalue à environ 20% la précision des mesures d'absorption.

II-3-2) Absorption et densité de métastables

La densité n_{3ou4} de métastable est reliée à l'absorption du faisceau laser accordé sur la transition D_k pour l'hélium-4 ou C_k pour l'hélium-3 :

$$n_{3ou4} = Z_{3ou4} \cdot \frac{m D}{\sqrt{\pi} L \alpha \hbar f} \cdot \frac{1}{\sum T_{ij}} \ln \left(\frac{1}{1-A} \right) \quad (II - 31)$$

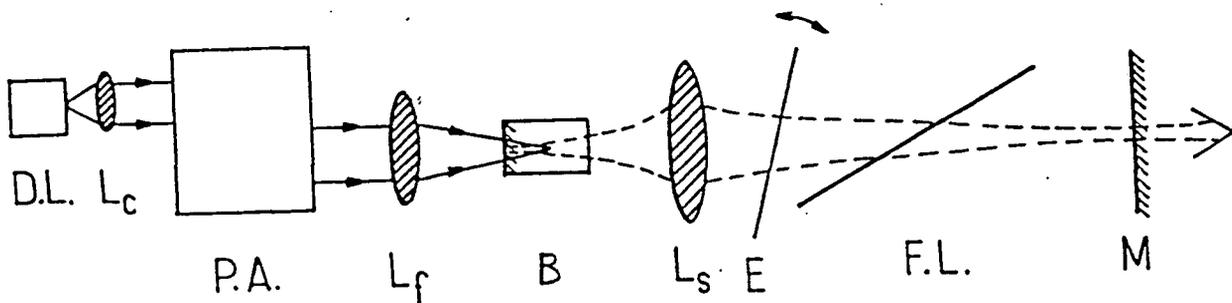
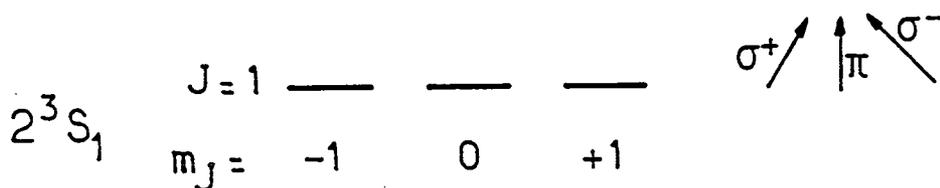


Figure II-3

Schéma du laser monomode. D.L. : réseau de diodes laser ; L_c , L_f et L_s : lentilles ; P.A. : prismes anamorphoseurs ; B : barreau de LNA avec sa face d'entrée traitée pour avoir une réflexion maximale à $1,08\mu m$ et minimale à $0,80\mu m$ et une face de sortie traitée antireflet à $1,08\mu m$; E : étalon solide de $1mm$ d'épaisseur ; F.L. : filtre de Lyot de $6mm$ d'épaisseur ; M : miroir de sortie de la cavité laser (transmission $\sim 2\%$).

$Z_3 = 6$ et $Z_4 = 3$: nombre de sous-niveaux de l'état métastable ; m : masse de l'électron ; D : largeur Doppler d'absorption de la transition (cf. Préliminaire) ; L : longueur parcourue par le faisceau dans le gaz ; α : constante de structure fine ; f : force d'oscillateur totale de la transition $2^3S \rightarrow 2^3P$, identique pour l'hélium-3 et l'hélium-4 ; $\sum T_{ij}$: somme des intensités de la transition D_k (ou C_k) entre les sous-niveaux A_i et E_j (cf. § II-1-3) et le tableau II-2 ; \mathcal{A} : absorption du faisceau laser ($0 \leq \mathcal{A} \leq 1$). Le calcul suppose des populations égales sur tous les sous-niveaux du métastable. Pour cette raison, (II-31) ne dépend pas de la polarisation optique du faisceau laser. De fait, l'égalité des populations de tous les sous-niveaux du métastable n'est vérifiée qu'à polarisation nucléaire nulle. Pour une polarisation nucléaire non-nulle, les populations des sous-niveaux des atomes dans l'état métastable ont une distribution exponentielle, ainsi qu'il en a été discuté à la fin du paragraphe II-1-2 ⁽¹⁾. Connaissant cette distribution exponentielle, il est aisé de calculer la variation de l'absorption pour une valeur de M donnée par rapport à l'absorption à $M = 0$. Les calculs, reportés sur la figure II-4, ont été effectués pour trois raies : D_0 de l'hélium-4 et C_8 et C_9 pour l'hélium-3 et pour quatre polarisations possibles du faisceau laser : σ^+ , σ^- , σ et π . Les calculs ont été menés à densité totale de métastable constante.

Pour l'hélium-4, polariser le fondamental d'hélium-3 revient à dépeupler les sous-niveaux $m_J = -1$ et 0 au profit du sous-niveau $m_J = +1$:



On constate ainsi que pour l'hélium-4 sur la raie D_0 , l'absorption sur σ^+ et π décroît avec M et s'annule pour $M = 1$, tous les atomes étant regroupés sur le niveau $m_J = +1$. Inversement, l'absorption sur σ^- croît monotonément et atteint à $M = 1$ une valeur triple de la valeur à $M = 0$, correspondant au regroupement des populations des trois sous-niveaux métastables sur un seul. L'absorption sur σ est la moyenne arithmétique de l'absorption sur σ^+ et σ^- .

Pour l'hélium-3, le métastable a une structure plus complexe :

⁽¹⁾ Cette distribution exponentielle n'est vérifiée que si la puissance laser du faisceau pompe est faible (cf. § II-1-3). Aussi, pour les expériences à forte puissance laser, les mesures de densité de métastable ont été effectuées une fois le laser pompe coupé, l'équilibre exponentiel imposé par l'échange de métastabilité étant alors atteint en un temps de l'ordre de τ_e , c'est-à-dire moins d'une microseconde.

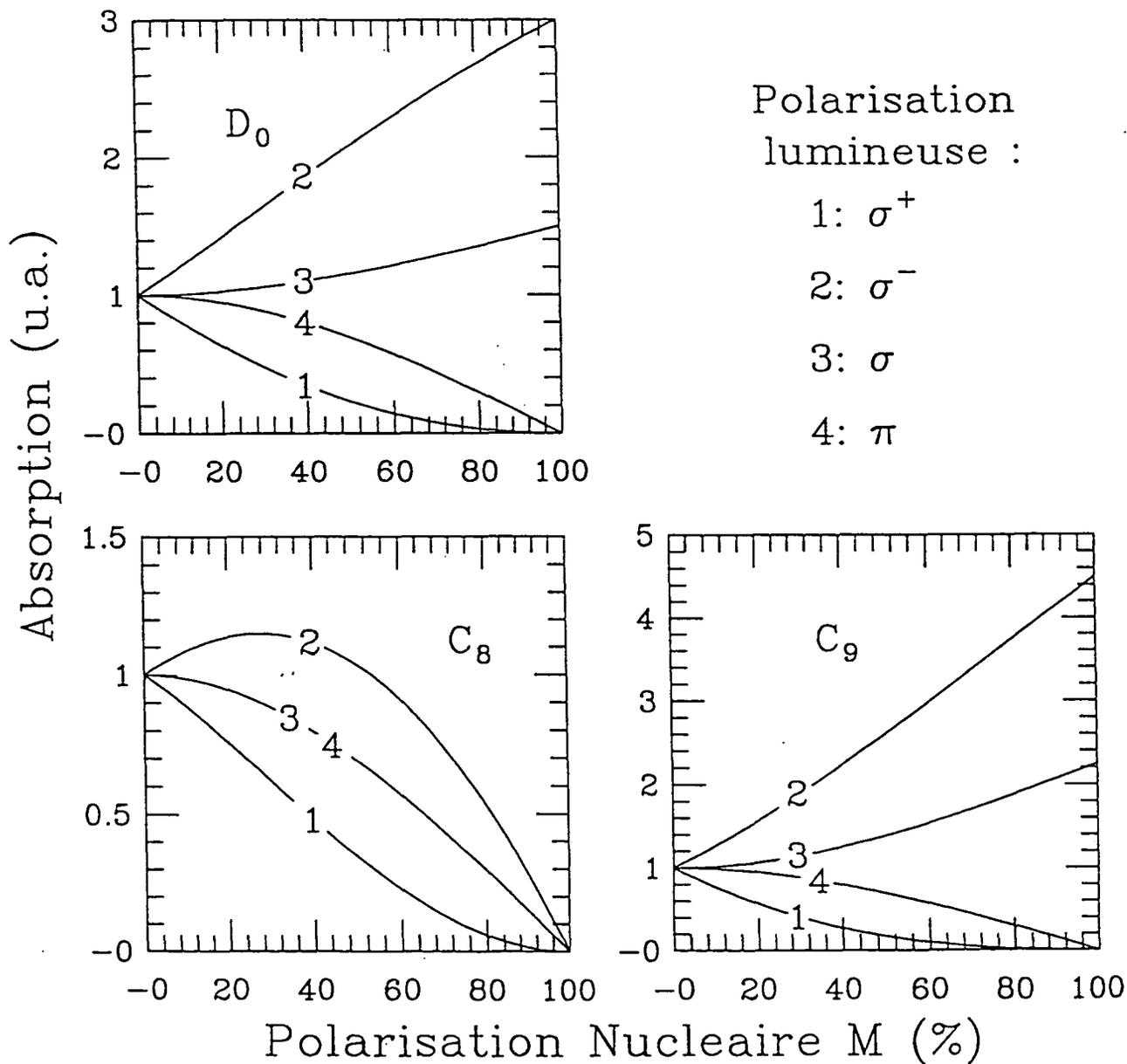
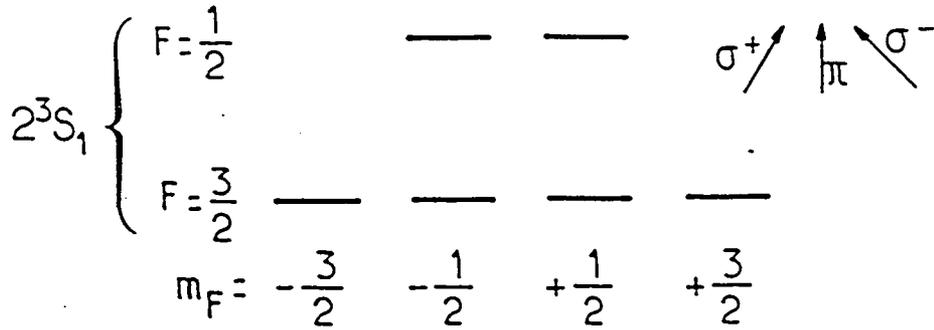


Figure II-4

Absorption d'un faisceau laser à $1,08\mu\text{m}$ par les métastables d'hélium en fonction de la polarisation nucléaire M des atomes d'hélium-3 dans l'état fondamental (l'absorption est normalisée à 1 pour $M = 0$). Le calcul est mené pour trois transitions (D_0 de l'hélium-4 et C_8, C_9 de l'hélium-3) et quatre polarisations lumineuses du faisceau sonde.



Polariser l'hélium-3 fondamental revient à déplacer les populations des sous-niveaux à m_F négatifs vers les sous-niveaux à m_F positifs. Une polarisation nucléaire $M = 1$ correspond à l'accumulation de tous les métastables dans le sous-niveau $F = \frac{3}{2}, m_F = \frac{3}{2}$. Ainsi, pour les transitions C_k partant du niveau $2^3S_1, F = \frac{3}{2}$, (C_9 par exemple), le comportement de l'absorption est similaire à celui des raies de l'hélium-4 : l'absorption sur σ^+ et π tend vers zéro et celle sur σ^- croît à une valeur sextuple de ce qu'elle serait à $M = 0$ si l'on pouvait exciter dans ce cas uniquement la transition $|2^3S_1, F = \frac{3}{2}, m_F = \frac{3}{2}\rangle \rightarrow |2^3P, F = \frac{1}{2}, m_F = \frac{1}{2}\rangle$. A $M = 0$, cette transition représente à 75% de l'absorption totale, le reste étant assuré par la transition : $|2^3S_1, F = \frac{3}{2}, m_F = \frac{1}{2}\rangle \rightarrow |2^3P, F = \frac{1}{2}, m_F = -\frac{1}{2}\rangle$. La situation est différente pour les raies C_k partant du niveau $2^3S_1, F = \frac{1}{2}$ (C_8 par exemple) : pour $M = 1$, les deux sous-niveaux sont vides et l'absorption est nulle quelque soit la polarisation du faisceau incident. La courbe pour σ^- passe par un maximum pour $M = 0,28$: le sous-niveau $m_F = +\frac{1}{2}$ commence par se peupler à partir des sous-niveaux de m_F inférieur puis se dépeuple au profit du sous-niveau $|2^3S_1, F = \frac{3}{2}, m_F = \frac{3}{2}\rangle$.

II-3-3) Résultats

Nous avons mesuré la variation de la densité de métastables en fonction de la polarisation nucléaire dans l'état fondamental de l'hélium-3. Compte-tenu de l'imprécision de nos mesures d'absorption (20%), nous n'avons pas mis en évidence de variation claire de la densité de métastable avec la polarisation nucléaire.

Pour tous les mélanges et pressions étudiés (ainsi que pour l'hélium-3 pur), les polarisations nucléaires les plus grandes ont été obtenues pour les décharges les plus faibles. Dans ces conditions, nous avons constaté que la densité relative de métastable $\frac{n}{N}$ diminue approximativement d'un facteur 10 quand la pression totale du gaz passe de 0,8 à 6,4 torr. Cela revient à avoir une densité de métastable n comprise entre 10^{10} et $2 \cdot 10^{10} \text{ cm}^{-3}$ dans les conditions optimales pour le pompage optique, et ceci quelque soit la pression totale. A forte pression, une telle diminution de $\frac{n}{N}$ est évidemment préjudiciable à la création de fortes polarisations nucléaires dans l'hélium-3 fondamental, du fait du plus grand nombre d'atomes dans l'état fondamental devant être orientés par un atome dans l'état métastable. On s'attend ainsi à obtenir de moins bons résultats pour la polarisation nucléaire à forte qu'à faible pression, ce qui est vérifié au paragraphe II-6.

II-4) Mesure de la polarisation nucléaire

Une première méthode est la R.M.N. (résonance magnétique nucléaire). Cette mesure est absolue si l'on est capable de déterminer avec suffisamment de précision la forme de la cellule et

la pression du gaz qu'elle contient, les caractéristiques électriques et géométriques des bobines de réception du signal ainsi que le coefficient de couplage ("facteur de remplissage") entre la cellule et les bobines. En fait, le facteur de remplissage est difficile à connaître. En pratique, cette méthode est très précise en valeur relative. Nous l'avons donc calibrée, dans nos conditions expérimentales (bobines données, fixe par rapport aux cellules toutes identiques) à l'aide d'une méthode optique rappelée ci-dessous.

La méthode optique de détection de la polarisation nucléaire que nous utilisons consiste à mesurer le taux de polarisation circulaire \mathcal{P} de la transition $3^1D \rightarrow 2^1P$ à $\lambda = 667,8nm$ (cf. figure P-1) [Pavlovic et al, 70], [Pinard, 73]. L'état 3^1D étant peuplé par la décharge essentiellement à partir du fondamental (directement ou après cascade radiative), sa polarisation nucléaire dépend de celle du fondamental. Ce niveau a une durée de vie suffisamment longue pour que par couplage hyperfin apparaisse une orientation électronique proportionnelle à sa polarisation nucléaire. La lumière émise est ainsi polarisée circulairement. Le rapport entre \mathcal{P} et la polarisation nucléaire M a été mesuré par les auteurs de [Pinard, 73] pour l'hélium-3 pur par comparaison avec une méthode d'absorption. Le résultat est rappelé figure II-5. Nous disposons ainsi d'une mesure absolue de la polarisation nucléaire avec une erreur relative de 10%. La mesure par R.M.N. est nécessaire pour les mélanges hélium-3/hélium-4 car le rapport M/\mathcal{P} n'est pas connu précisément dans ce cas là.

Nous allons commencer par décrire la méthode utilisée pour calibrer la chaîne de la détection optique. Ensuite, nous présenterons le dispositif de R.M.N. et sa calibration par rapport à la détection optique.

II-4-1) Calibration de la détection optique

Le principe du montage de détection optique est représenté figure II-6. La lumière à analyser traverse une lame à $\lambda/4$ L_2 tournant à la fréquence ν puis un polariseur fixe P_2 . On obtient ainsi un signal modulé à 2ν , qui est détecté à l'aide d'un amplificateur à détection synchrone (à 2ν). Les éléments optiques (polariseur et lame $\lambda/4$) n'étant pas parfaits, nous avons dû étalonner la chaîne de détection optique (la linéarité des autres éléments de la chaîne, tels que le photomultiplicateur ou la détection synchrone, ayant été vérifiée). L'idéal serait d'envoyer sur la chaîne de détection une lumière polarisée circulairement à un taux connu. De fait, ne disposant pas d'éléments optiques parfaits pour réaliser une telle lumière, nous avons procédé à deux séries de mesures :

a) Une décharge étant allumée dans la cellule, on intercale entre le diaphragme (DP) et la $\lambda/4$ tournante L_2 un polariseur P_1 identique à celui de l'analyseur P_2 (cf. figures II-6 et II-7a). On mesure alors la composante continue du signal délivré par le photomultiplicateur et les composantes modulées à 2ν et 4ν à l'aide de la détection synchrone. Ces mesures sont réalisées pour plusieurs valeurs de l'angle θ entre les polariseurs linéaires P_1 et P_2 . Ces résultats sont reportés sur la figure II-8a : les croix correspondent à la composante continue (S_c , unité arbitraire), les carrés aux rapports de la composante à 2ν avec la composante continue ($S_{2\nu}$, en %) et les losanges aux rapports de la composante à 4ν avec la composante continue ($S_{4\nu}$, en %). Les courbes en pointillés correspondent au résultat du calcul de S_c , $S_{2\nu}$ et $S_{4\nu}$ dans le cas où tous les éléments optiques sont parfaits (le calcul, basé sur le formalisme de la matrice polarisation, est détaillé dans l'Appendice C). La modulation à 4ν découle du fait que 4 fois par tour, un axe optique de L_2 se retrouve colinéaire à P_1 .

b) On intercale dans le montage précédent une $\lambda/4$ L_1 , identique à L_2 , entre P_1 et L_2 (cf. figure II-7b) dont les axes sont tournés de 45° par rapport à P_1 . Les mêmes mesures que pour a) sont alors menées. Si l'optique était parfaite, P_1 et L_1 devraient créer un faisceau totalement polarisé circulairement et seule une modulation à 2ν devrait être observée ; de plus, cette modulation serait totale ($S_{2\nu} = 100\%$). Les résultats sont reportés sur la figure II-8b.

Pour ajuster les courbes théoriques aux valeurs expérimentales, nous disposons de trois

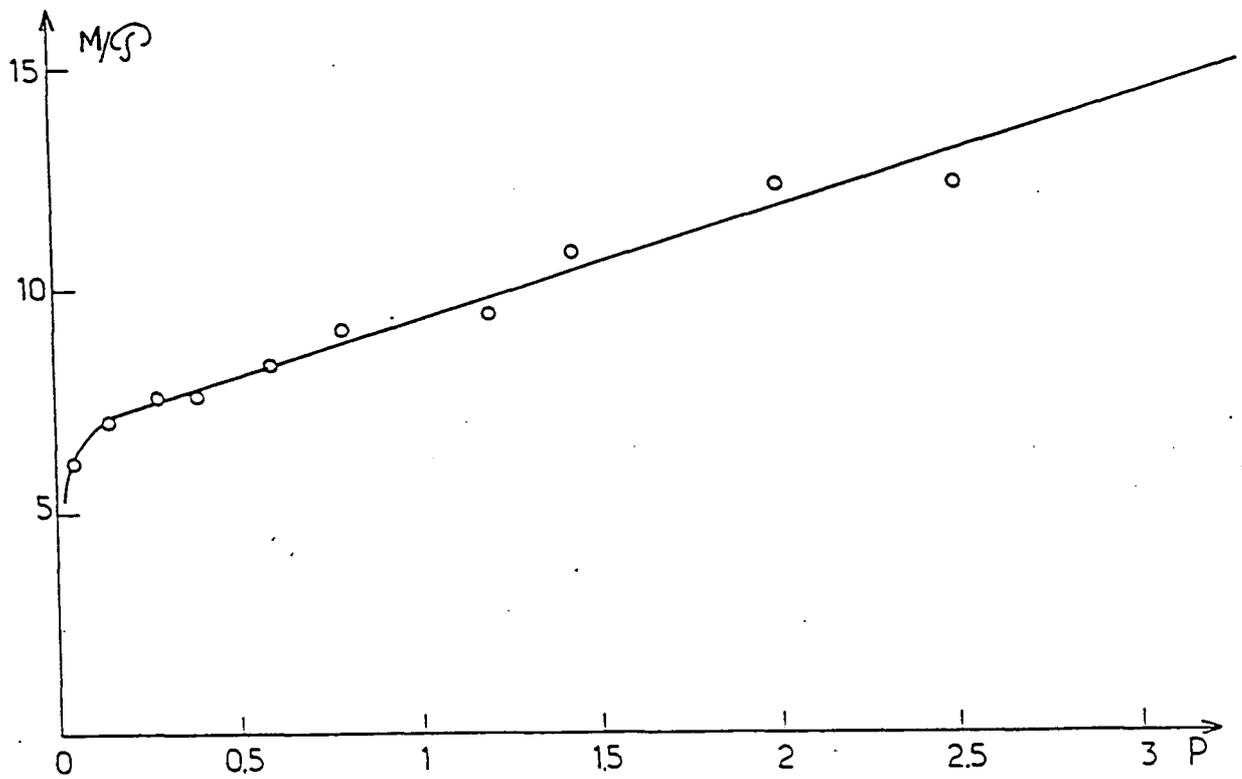


Figure II-5

Rapport entre la polarisation lumineuse \mathcal{P} de la raie de 668nm émise par la décharge et la polarisation nucléaire M du fondamental en fonction de la pression P (d'après [Pinard, 73]).

II - 6

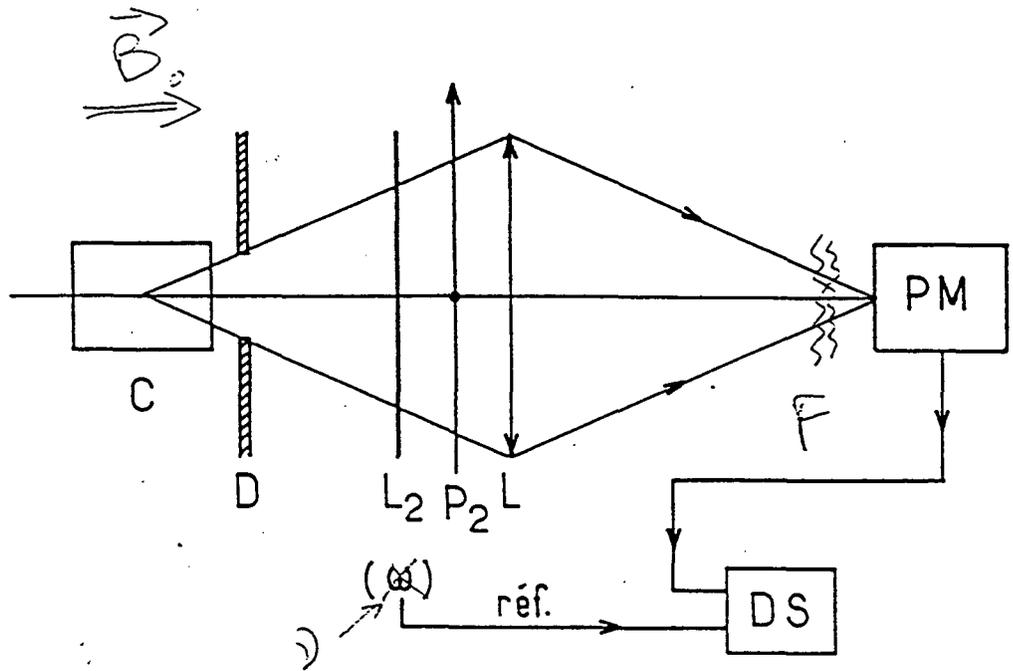


Figure II-6

Principe de la mesure du taux de polarisation circulaire de la lumière émise par la décharge entretenue dans la cellule C. D : diaphragme ; L_2 : lame $\lambda/4$ tournant à la fréquence ν ; P_2 : polariseur ; L : lentille de focalisation ; F : miroir haute réflexion à $1,08\mu m$ et filtre interférentiel centré sur $\lambda = 668nm$; P.M. : photomultiplicateur ; D.S. : détection synchrone.

I - 7

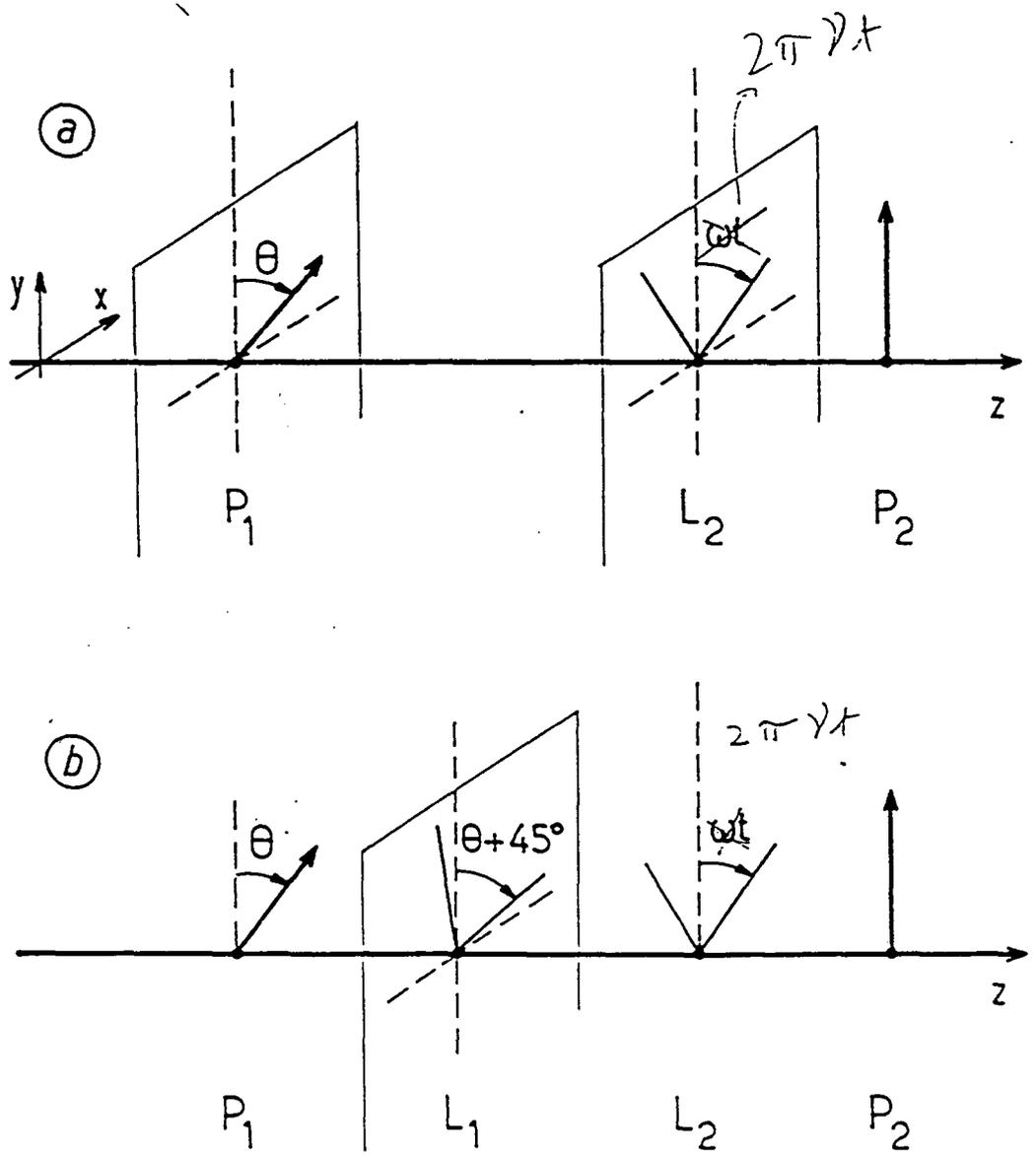


Figure II-7
 Principe de la calibration de la chaîne de détection optique. P_1 : polariseur tourné d'un angle θ par rapport au polariseur fixe P_2 ; L_2 : lame $\lambda/4$ tournant à la fréquence ν ; L_1 : lame $\lambda/4$ inclinée de 45° par rapport au polariseur P_1 .

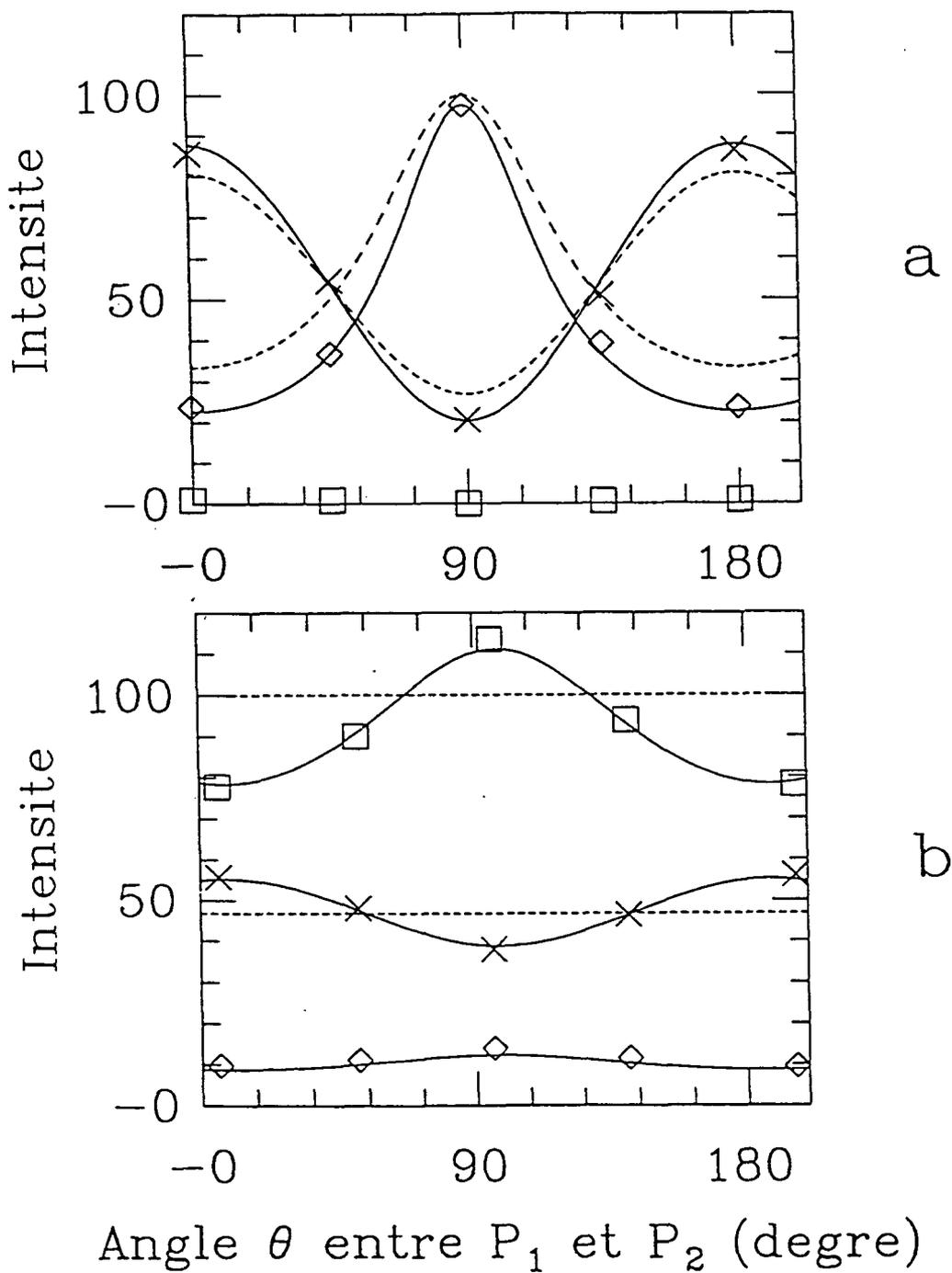


Figure II-8

Résultats expérimentaux et numériques de la calibration de la détection optique pour les composantes S_c (croix, unité arbitraire), $S_{2\nu}$ (carrés, en %) et $S_{4\nu}$ (losanges, en %). Traits pointillés (resp. pleins) : résultats du calcul dans le cas où les éléments optiques sont parfaits (resp. imparfaits). II-8a (resp. II-8b) correspond au montage décrit dans le dessin II-7a (resp. II-7b).

paramètres : le défaut des polariseurs qui laissent passer une certaine fraction ε de la polarisation perpendiculaire à la polarisation principale ; l'angle de déphasage φ des lames $\lambda/4$ qui peut être différent de 90° et l'angle θ' entre P_1 et L_1 qui peut être différent de 45° . L'erreur de réglage pour sur θ' étant de l'ordre de 3° et le résultat final dépendant très peu de θ' dans cette plage de variation, nous avons arbitrairement choisi $\theta' = 48^\circ$. Les courbes théoriques ont été obtenues avec $\varepsilon = 5\%$ et $\varphi = 75^\circ$ et sont en bon accord avec les points expérimentaux. La valeur de 5% de défaut pour les polariseurs est compatible avec une mesure directe par la méthode polariseur/analyseurs croisés.

Pour connaître la correction à apporter à la mesure par détection optique pour tenir compte des imperfections de L_2 et P_2 , nous avons simulé une lumière polarisée circulairement à 100% . Pour cela, dans le calcul nous avons supposé P_1 et L_1 parfaits (pour P_1 : $\varepsilon = 0$; pour L_1 : $\varphi = 90^\circ$) et à $\theta' = 45^\circ$ tout en conservant les valeurs de ε et φ précédemment trouvées pour P_2 et L_2 . Le taux calculé de modulation à 2ν est alors de 96% . Ainsi, bien que la lame $\lambda/4$ soit de très mauvaise qualité et que le polariseur ne soit pas parfait, notre système de détection optique n'est pessimiste que de 4% . Ce résultat reste valable quel que soit le taux de polarisation de la lumière incidente car le système de détection est linéaire. Nous avons donc corrigé d'un facteur $1,04$ les valeurs de \mathcal{P} mesurées. Une amélioration de la détection optique consistera à utiliser des éléments optiques de meilleure qualité, car dans ces conditions on prédit que les erreurs systématiques seront très diminuées.

II-4-2) Le champ magnétique

La relaxation de la polarisation nucléaire causée par les inhomogénéités du champ magnétique B_0 (B_0 parallèle à l'axe z) sont de deux sortes :

i) relaxation affectant la composante longitudinale de la polarisation (constante de temps : T_{1m}) due principalement aux gradients de B_{ox} et B_{oy} [] :

$$\frac{1}{T_{1m}} = \frac{\gamma^2 (\delta B_0)^2 \tau_d}{1 + (\gamma B_0 \tau_d)^2} \quad (II - 32)$$

où γ est le rapport gyromagnétique, τ_d le temps de diffusion vers la paroi dans le mode le plus lent et δB_0 la variation de B_{ox} ou B_{oy} sur la cellule ;

ii) relaxation affectant la composante transversale de la polarisation (constante de temps : T_2) due principalement aux gradients de B_{oz} [] :

$$\frac{1}{T_2} = (\gamma \cdot \delta B_{oz})^2 \tau_d \quad (II - 33)$$

Les cellules de gaz sont placées dans le champ magnétique de 20gauss produit par deux bobines circulaires placées en position de Helmholtz (cf. figure II-9). En l'absence de décharge, T_{1m} est supérieur à une heure, ce qui n'est pas optimal (des temps de relaxation T_{1m} de ** heures ont été obtenus par *** dans des conditions similaires []). Cette valeur de T_{1m} est limitée par les gradients magnétiques dus à l'environnement. Notre valeur de T_{1m} est néanmoins nullement limitante pour des expériences de pompage optique car en présence de la décharge, le temps de relaxation global T_1 est de l'ordre de la minute dans nos conditions expérimentales. La relaxation de la polarisation nucléaire est ainsi dominée par la relaxation induite par la décharge. Par contre, nous avons dû compenser les gradients de B_{oz} à l'aide de bobines annexes (cf. figure II-9) pour allonger T_2 à des valeurs supérieures à 1s pour que les mesures par R.M.N. bénéficient d'un rapport signal sur bruit suffisant [Tastevin, 87].

II-4-3) Résonance Magnétique Nucléaire

II-9

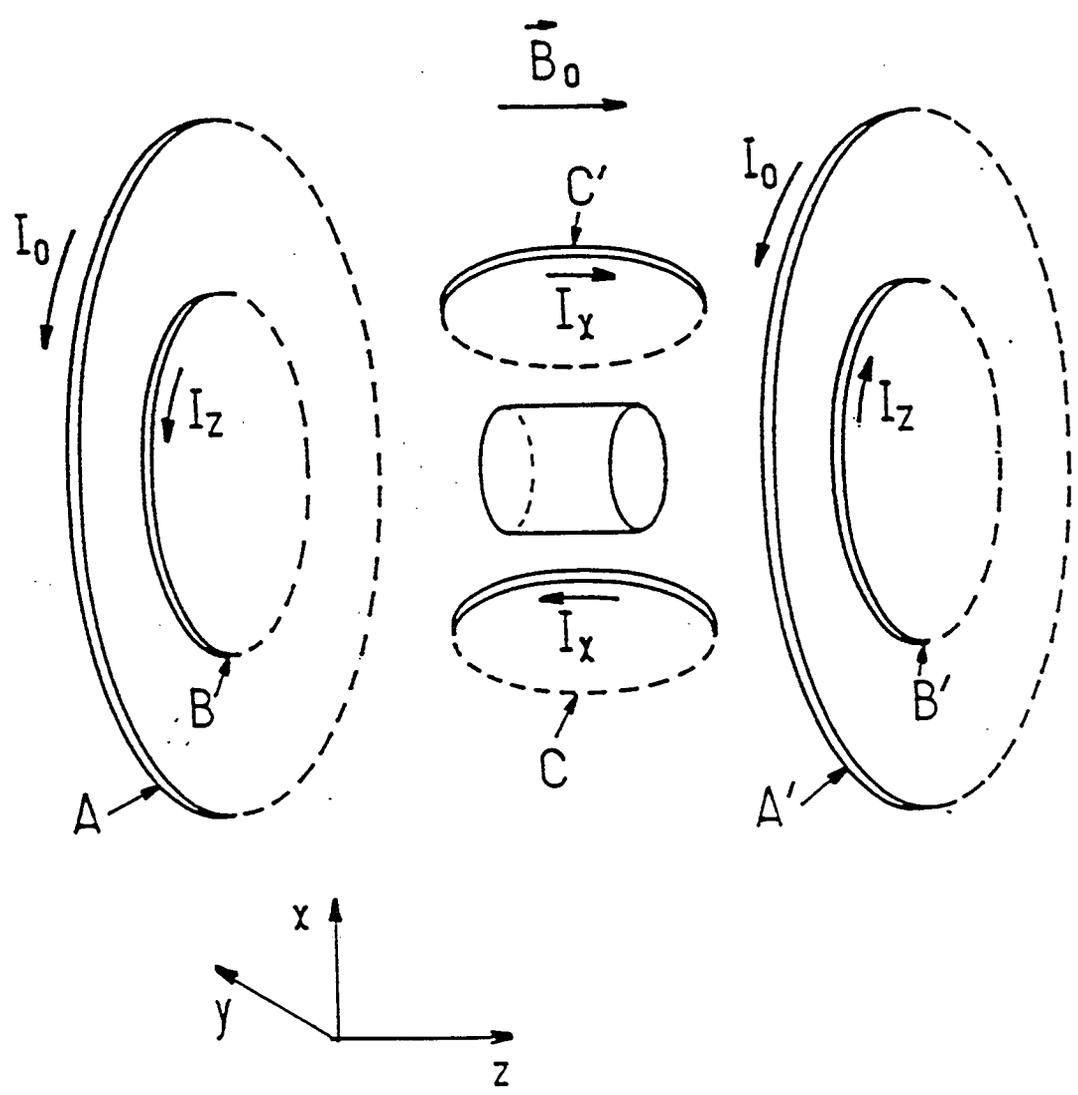


Figure II-9
 Disposition des bobines pour créer le champ magnétique sur la cellule. A et A': bobines placées à Helmholtz créant un champ B_0 de 20gauss. B et B': bobines de compensation du gradient de B_{0z} suivant Oz. C et C': bobines de compensation du gradient de B_{0z} suivant Ox. Nous n'avons pas représenté les deux bobines de compensation du gradient de B_{0z} suivant Oy : elles sont disposées comme C et C' mais selon Oy.

Une impulsion de champ radiofréquence $B_1 \cos \omega t$ résonnant avec le moment magnétique nucléaire des atomes d'hélium-3 bascule dans le plan perpendiculaire à la direction de l'aimantation tout ou partie de cette aimantation, suivant l'intensité et la durée de l'impulsion. L'aimantation transverse ainsi créée, d'intensité proportionnelle à l'aimantation longitudinale, précesse alors autour de B_0 et décroît en un temps caractéristique T_2 . Cette précession est détectée par deux bobines faisant partie d'un circuit résonnant à la pulsation ω fréquence ν_0 de facteur de qualité $Q = 46$ (cf. figure II-10). Un signal typique obtenu après une détection synchrone est présenté figure II-11. Le battement observé sur les signaux en phase et en quadrature sont dus à la différence de fréquence entre la pulsation de précession des atomes ω_0 et la pulsation de référence ω provenant du générateur de radiofréquence créant le champ oscillant B_1 .

La calibration de la R.M.N. a été effectuée avec une cellule de 0,8 torr d'hélium-3 pur. Les mesures par R.M.N. et optiques ont été réalisées simultanément. Le plus grand soin a été pris pour la détection optique : un diaphragme (D.P.) a été placé derrière la cellule (cf. figure II-6) pour occulter toute lumière transitant par les bords de la cellule, car elle pourrait y être dépolarisée par les joints de soudure nécessaires à l'assemblage de la cellule.

Les valeurs de la polarisation nucléaire lors des mesures de calibration étaient élevées (60 à 80%), ce qui nous a permis d'obtenir un rapport signal sur bruit excellent pour la R.M.N. et la détection optique, les mesures se faisant chacune à environ 2% près (hormis toute erreur systématique résiduelle éventuelle). Globalement, on peut estimer à mieux que 5% la précision de la calibration de la R.M.N. par rapport à la détection optique. De fait, la calibration de la R.M.N. en fonction de la polarisation nucléaire est limitée par la précision de la détermination du rapport M/P , mais elle pourra être améliorée, de nouvelles mesures pour déterminer ce rapport étant en cours.

II-5) Résultats numériques et expérimentaux dans le régime linéaire

II-5-1) Dispositif expérimental et procédure

Le pompage optique a été réalisé avec le laser monomode (décrit § II-3-1) servant également à effectuer les mesures de densité de métastables. Le schéma global de l'expérience est reporté figure II-12. La puissance du laser a été mesurée à l'aide de la photodiode servant également à déterminer l'absorption du faisceau. Cette photodiode a été calibrée contre un calorimètre sur sa gamme la plus sensible ($1mW$) après avoir vérifié la linéarité de sa réponse avec l'énergie incidente. La calibration relative est à mieux que 5%. La puissance du laser était de l'ordre de $0,5mW$.

La décharge était allumée dans la cellule plusieurs heures avant le début des mesures. En effet, nous avons constaté des variations de l'absorption du faisceau sonde (et donc de la densité de métastable) après avoir allumé la décharge sur une échelle de temps de l'ordre d'une heure. En début et en fin d'expérience, le temps de relaxation T_1 en présence de la décharge était mesuré, l'égalité de ces deux valeurs confirmant la stabilité de la décharge durant les autres mesures. Le pompage optique était effectué durant un laps de temps supérieur à $3T_1$, T_1 étant également le temps de pompage pour les faibles valeurs de la puissance laser (cf. § II-6-4). La mesure de la variation de la transmission du faisceau laser à travers la cellule lors de l'extinction de la décharge permet alors la mesure de l'absorption du faisceau laser. La polarisation nucléaire M était ensuite déterminée par R.M.N.

II-5-2) Limites du régime linéaire : effet de $x = \frac{n_4}{n_4}$; puissance laser absorbée

Les formules (II-24) et (II-25) donnent une relation linéaire entre la polarisation nucléaire M et l'intensité du faisceau laser incident I pour de faibles valeurs de M (régime linéaire). Le calcul numérique complet montre que le domaine de validité de cette relation est restreint : sur la figure II-13 est reporté en pointillés le résultat du calcul dans le régime linéaire et en trait plein les résultats du calcul numérique pour quatre valeurs différentes du paramètre x (décrivant la fraction

II-10

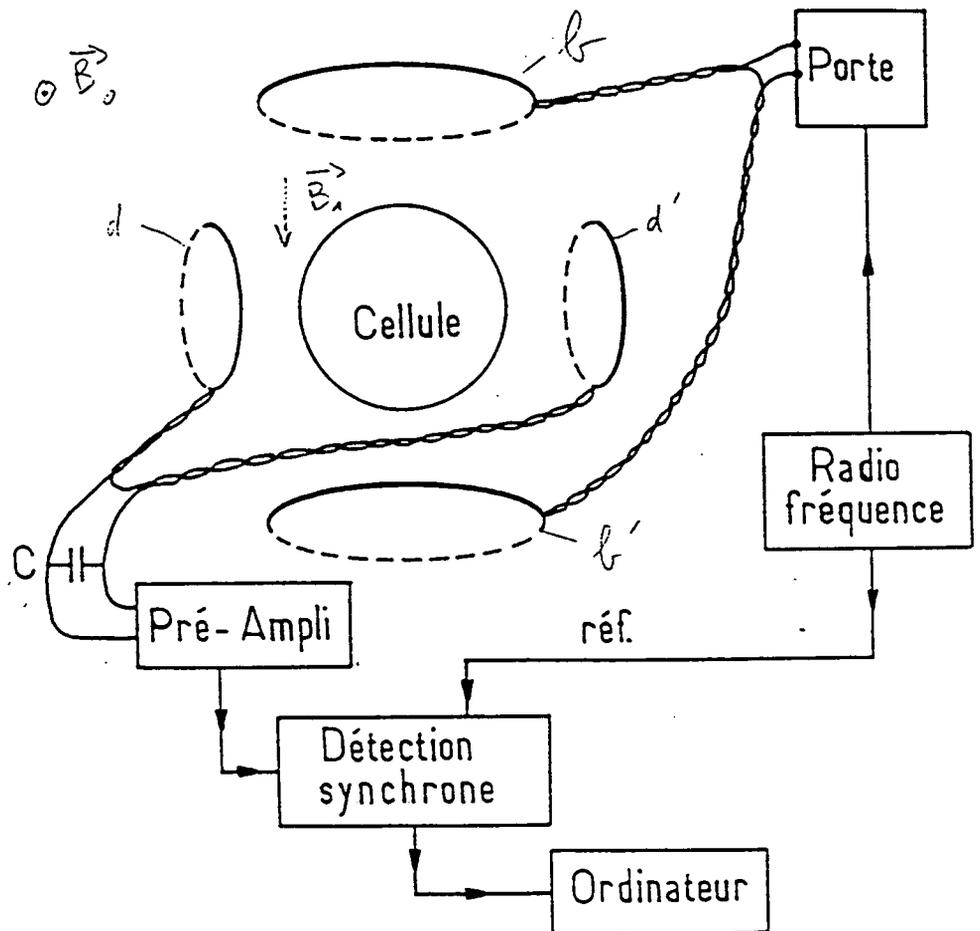


Figure II-10

Synoptique de la mesure de détection par R.M.N.. L'impulsion de radiofréquence B_1 est créée par les bobines b et b' . La précession des atomes autour de B_0 est détectée par les bobines d et d' .

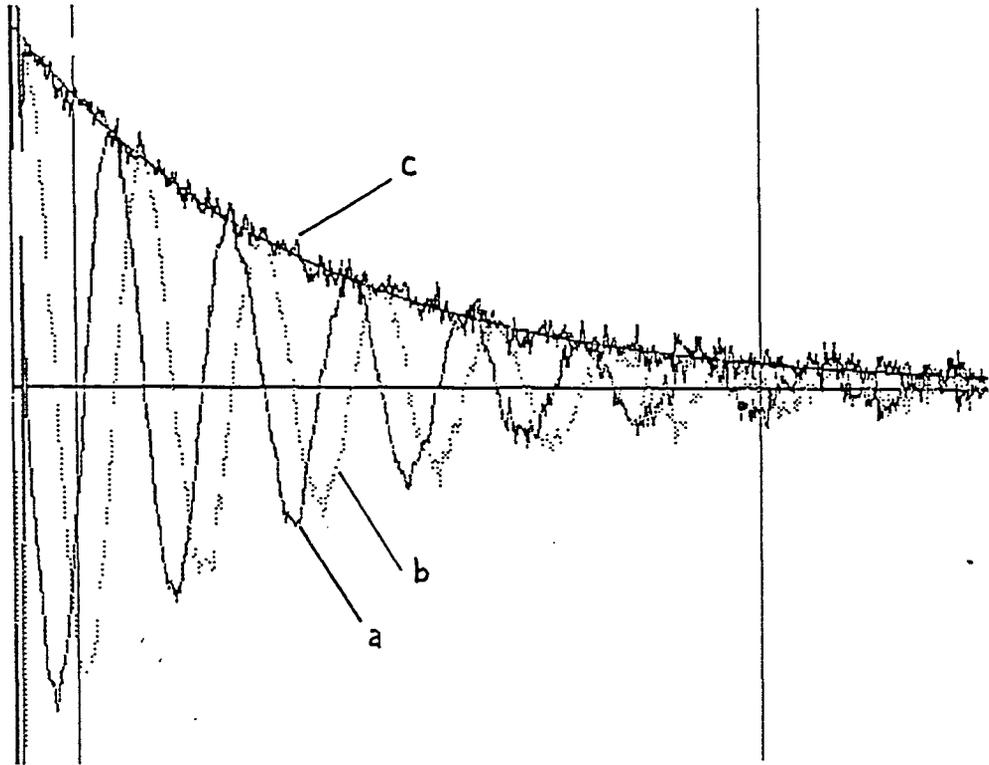


Figure II-11

Réponse typique à une impulsion radiofréquence ; a : signal en phase ; b : signal en quadrature (cf. texte). c : module du signal initial calculé à partir de a et b ($c = \sqrt{a^2 + b^2}$).

II-12

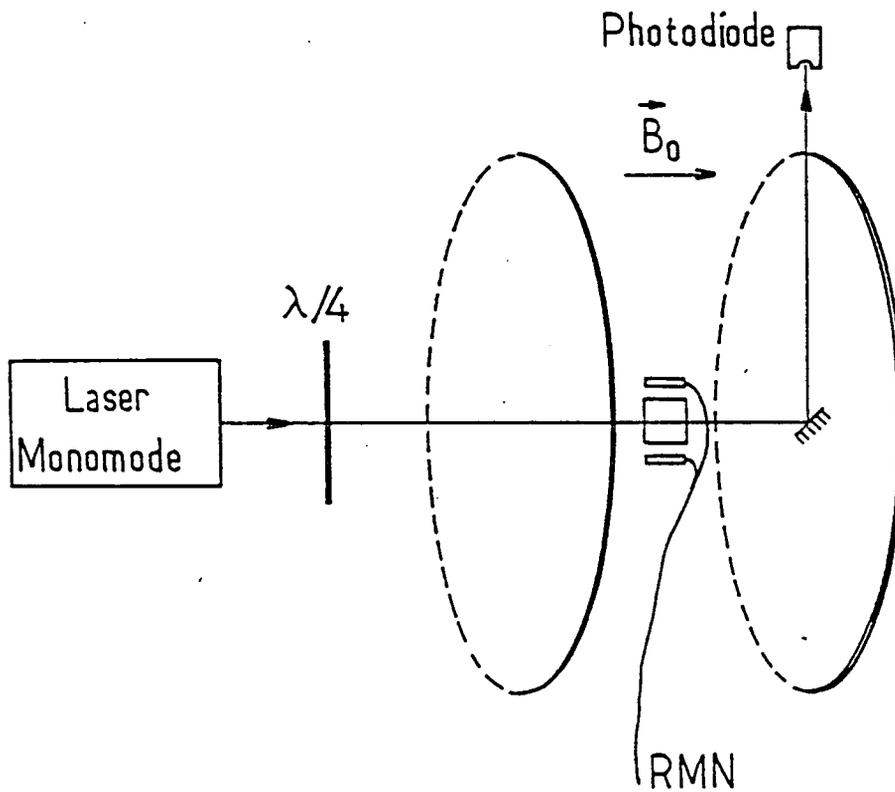


Figure II-12

Situation d'ensemble des expériences de pompage optique à faible puissance laser. Le laser monomode sert à la fois de laser pompe pour la polarisation nucléaire et de laser sonde pour déterminer la densité de métastables.

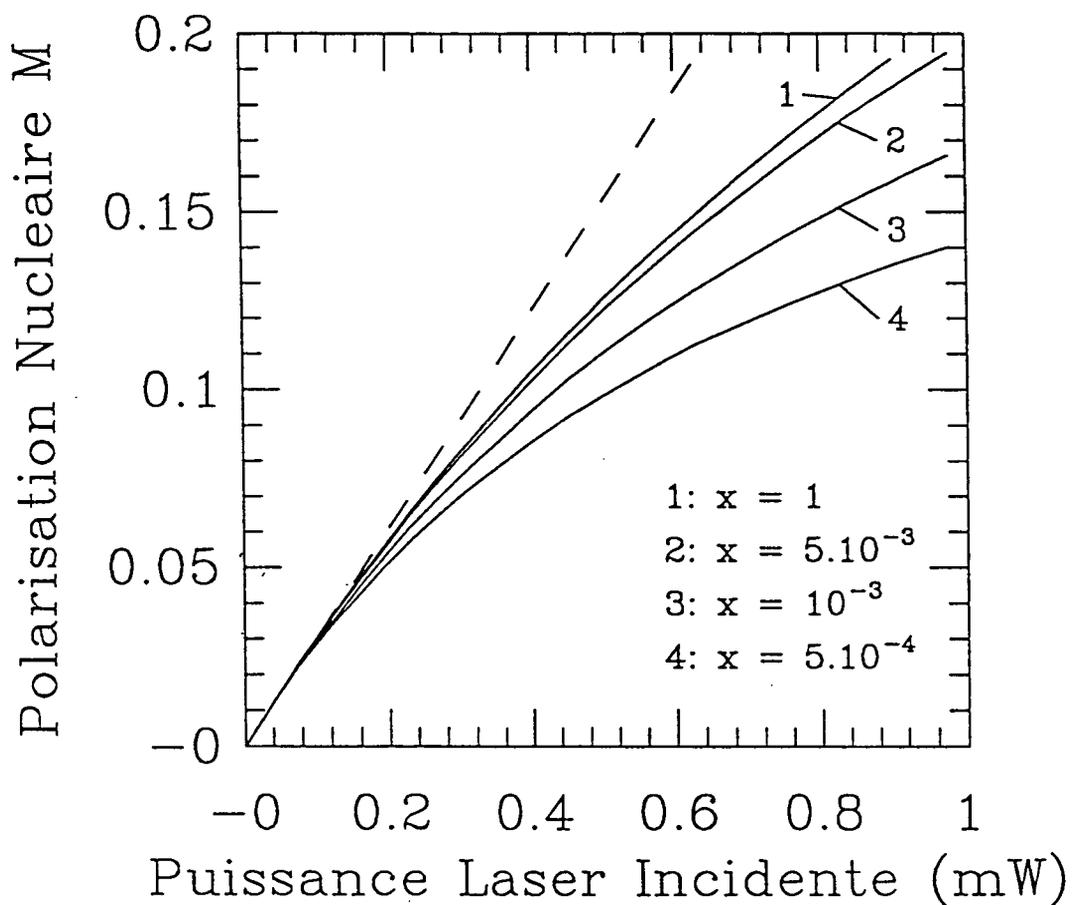


Figure II-13

Calcul de la polarisation nucléaire M en fonction de la puissance laser incidente. En pointillé : régime linéaire ; en traits pleins : calcul complet (pour quatre valeurs du paramètre $x = \frac{n_3^2}{n_4}$). Le calcul a été mené pour une cellule à mélange (0,4 torr d'hélium-3 et 1,2 torr d'hélium-4) en pompage optique sur D_0 , avec les paramètres : $\frac{n}{N} = 5,5 \cdot 10^{-7}$; $T_1 = 360s$ ($T_r = 2000s$ et $\tau_r = 3ms$) correspondant à une situation expérimentale étudiée par ailleurs.

des métastables effectivement couplés au laser, cf. § II-1-3). Comme prévu lors du calcul du régime linéaire (cf. § II-1-5), toutes ces courbes ont la même pente à l'origine. L'écart au régime linéaire intervient d'autant plus vite que x est petit, car diminuer x revient à augmenter le taux de pompage des atomes métastables couplés au laser (moins d'atomes se partagent le même nombre de photons). Les effets non-linéaires interviennent ainsi plus rapidement à puissance laser totale donnée pour les faibles valeurs de x .

Nous avons reformulé les relations (II-24) et (II-25) en faisant intervenir la puissance laser absorbée et non plus incidente. On obtient ainsi à faible puissance et pour un pompage optique sur :

la raie D_0 :

$$M = T_1 \frac{AI}{P_3} \cdot 0,377 \quad (II - 34a)$$

la raie C_9 :

$$M = T_1 \frac{AI}{P_3} \cdot 0,396 \cdot \frac{\frac{\tau_{dep}}{\tau} + 1,1869}{\frac{\tau_{dep}}{\tau} + 1} \quad (II - 34b)$$

la raie C_8 :

$$M = T_1 \frac{AI}{P_3} \cdot 0,336 \cdot \frac{\frac{\tau_{dep}}{\tau} + 0,5596}{\frac{\tau_{dep}}{\tau} + 1} \quad (II - 34c)$$

où A est le taux d'absorption du faisceau laser et P_3 la pression d'hélium-3 (en torr). M est exprimée en % et est bien linéaire en fonction de l'intensité laser absorbée AI . Le premier intérêt de cette formulation est que tous les paramètres intervenant dans les relations (II-34) sont accessibles directement expérimentalement : il n'est pas nécessaire de faire intervenir des valeurs intermédiaires comme la densité de métastables.

La description en terme de puissance laser absorbée présente un deuxième intérêt : dans ces conditions, l'écart au régime linéaire se produit pour des valeurs de M beaucoup plus élevées comme on peut le constater sur la figure II-14 où les mêmes paramètres que pour la figure II-13 ont été utilisés. En abscisse est portée la puissance laser absorbée (et non incidente comme sur la figure II-13), l'axe des ordonnées restant inchangé. Par exemple, pour les valeurs de x supérieures à $5 \cdot 10^{-3}$, le régime reste linéaire au-delà de $M = 50\%$, ce qui justifie l'emploi des formules (II-34) dans ces conditions jusqu'à des valeurs de polarisation nucléaire importantes. Ainsi, la première raison de la non-linéarité intervenant dans les courbes donnant M en fonction de la puissance laser incidente (comme pour la figure II-13) est dû à la diminution de l'absorption du laser quant la puissance laser augmente, comme conséquence du dépeuplement du (ou des) sous-niveau(x) hyperfin(s) à partir duquel (desquels) a lieu le pompage optique.

Lors des expériences menées antérieurement par Leduc et Nacher [Nacher et al, 85] de pompage optique sur l'hélium-3 pur, x avait été évalué à environ 0,04 ⁽¹⁾ dans une cellule de géométrie identique (mais remplie à une pression de 0,3 torr) et avec un laser monomode. Cette valeur est uniquement un ordre de grandeur, les densités de métastables n'ayant pas été déterminées précisément. Dans l'expérience présente, la mesure de la puissance absorbée par la cellule nécessite un faisceau de petit diamètre. Pour pouvoir collecter le faisceau du laser après sa traversée de la cellule, il présentait ainsi une surface d'environ $0,2 \text{ cm}^2$ ($\varnothing \sim 5 \text{ mm}$). Tenant compte du rapport des deux surfaces, on obtient une valeur de x effective d'environ $5 \cdot 10^{-4}$. A la vue de nos conditions expérimentales (puissance laser de l'ordre de $0,5 \text{ mW}$, absorption inférieure à 10% et valeurs de M

⁽¹⁾ La valeur annoncée dans [Nacher et al, 85] (0.01) intègre une correction entre la surface de la cellule et la surface réelle du faisceau.

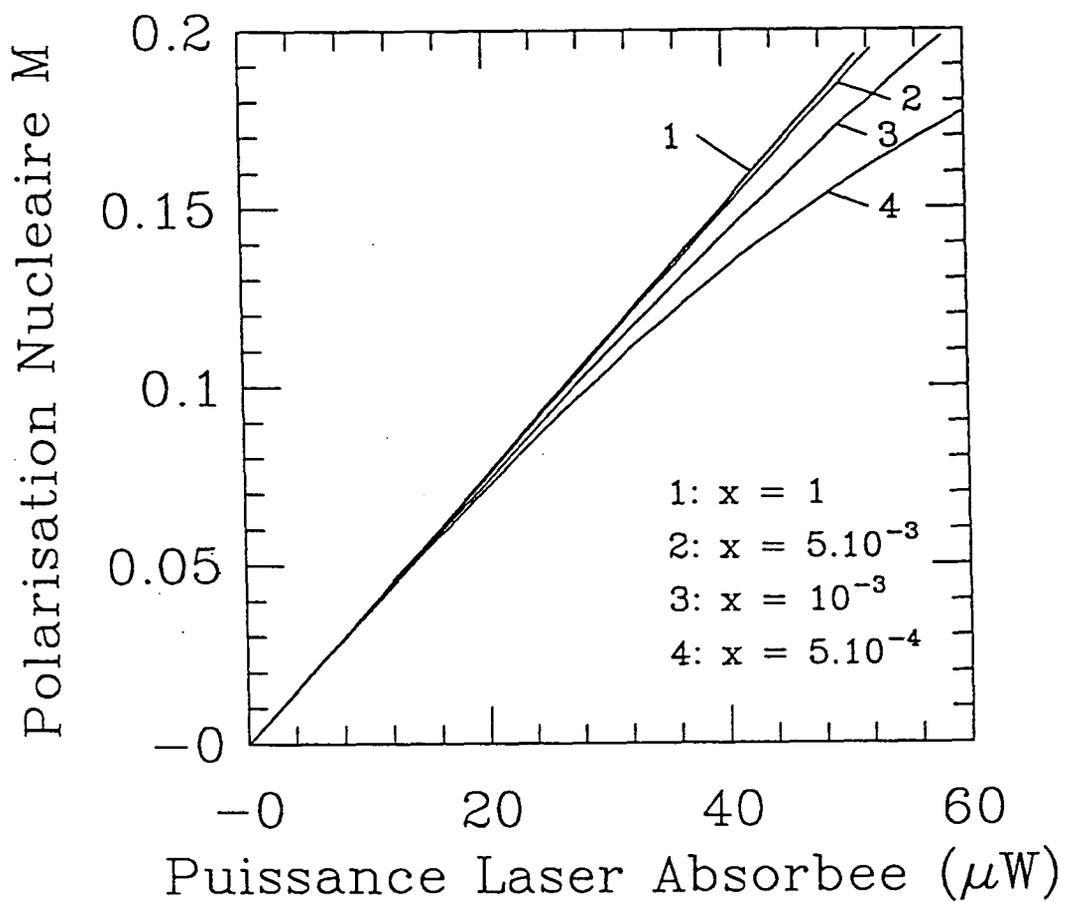


Figure II-14

Calcul de la polarisation nucléaire M en fonction de la puissance laser absorbée. On a utilisé les mêmes paramètres que pour la figure II-13.

inférieures à ou de l'ordre de 10% suivant le gaz étudié), le régime linéaire (en terme de puissance laser absorbée) peut être considéré comme étant une hypothèse valide. De ce fait, nous allons comparer les résultats expérimentaux avec les relations II-34.

II-5-3) Evaluation du rapport $\frac{\tau_{dep}}{\tau}$ pour l'hélium-3 pur

Contrairement à D_0 , le pompage optique sur C_8 et C_9 dépend du rapport $\frac{\tau_{dep}}{\tau}$ ⁽¹⁾ et τ la durée de vie de cet état. (cf. formules (II-34b) et (II-34c)). Le rapport η_{98} de la polarisation nucléaire par microwatt de puissance laser absorbée pour C_9 et pour C_8 dépend uniquement de $\frac{\tau_{dep}}{\tau}$:

$$\eta_{98} = \frac{M(C_9) \text{ pour } 1\mu W}{M(C_8) \text{ pour } 1\mu W} = \frac{396}{336} \cdot \frac{\frac{\tau_{dep}}{\tau} + 1,1869}{\frac{\tau_{dep}}{\tau} + 0,5596} \quad (II - 35)$$

à condition que rien ne soit changé par ailleurs (même cellule, même décharge (i.e. même T_1)). Les variations de η_{98} avec $\frac{\tau_{dep}}{\tau}$ sont reportées sur la figure II-15. Ce rapport varie notablement dans la région où τ_{dep} et τ sont du même ordre de grandeur. Le cas correspondant à une dépolarisation dans l'état excité négligeable ($\frac{\tau_{dep}}{\tau} > 10$) correspond au régime dit "Kastler". Le cas opposé ($\frac{\tau_{dep}}{\tau} < 0,1$) correspond à une dépolarisation totale de l'état excité (régime dit "Dehmelt". τ_{dep} et τ sont égaux pour une pression approximativement de 1 torr []).

La variation en valeur absolue de η_{98} étant faible, la détermination de $\frac{\tau_{dep}}{\tau}$ n'est pas très précise. Pour une cellule de 0,8 torr d'hélium-3 pur, nous avons trouvé, pour deux décharges très différentes, des rapports η_{98} égaux à 10% (1,21 et 1,33). Compte-tenu de l'imprécision de la mesure de la puissance absorbée, on trouve, pour une pression de 0,8 torr, $\frac{\tau_{dep}}{\tau}$ compris entre 4 et 20, ce qui correspond tout à fait à l'ordre de grandeur attendu ($\frac{\tau_{dep}}{\tau}$ un peu supérieur à 1, la pression dans la cellule étant légèrement inférieure à 1 torr). Cette imprécision sur la valeur de $\frac{\tau_{dep}}{\tau}$ influe peu sur les résultats numériques, car la faible dépendance de η_{98} avec le rapport $\frac{\tau_{dep}}{\tau}$ reflète celles du même ordre de grandeur de M en pompage sur C_8 ou sur C_9 . Par la suite, pour cette cellule de 0,8 torr d'hélium-3 pur, nous prendrons $\frac{\tau_{dep}}{\tau} = 7$ qui correspond à une valeur de η_{98} égale à la moyenne arithmétique des deux valeurs expérimentales. Par rapport à un cas idéal sans dépolarisation dans l'état excité ($\frac{\tau_{dep}}{\tau} = \infty$), les valeurs théoriques des pentes (formules II-34) sont multipliées par 1,02 pour C_9 et 0,90 pour C_8 .

II-5-4) Résultats expérimentaux

Nous avons mené des expériences de pompage optique dans le régime linéaire pour trois mélanges différents d'hélium-3 et d'hélium-4 (0,2 torr d'hélium-3 + 0,6 torr d'hélium-4 ; 0,4+1,2 et 1,17+1,43), et pour une cellule d'hélium-3 pur (0,8 torr). Les cellules contenant un mélange ont été testées dans un seul niveau de décharge (le plus faible possible dans nos conditions expérimentales) alors que la cellule d'hélium-3 pur a été testé à deux niveaux de décharge (le plus faible possible et un niveau plus fort). Dans chaque cas ont été mesurés la polarisation nucléaire M , le temps de relaxation T_1 , l'intensité laser I et son taux d'absorption A .

Sur la figure II-16 sont confrontés la valeur de M expérimentale en donnée et en abscisse la valeur de M prédite par les équations II-34 compte-tenu des valeurs de T_1 , A et I mesurées (et de $\frac{\tau_{dep}}{\tau} = 7$ dans le cas de la cellule d'hélium-3 pur). La figure II-16a correspond aux trois cellules à mélange (pompage sur D_0) et la figure II-16b à la cellule à hélium-3 pur pour deux niveaux de décharge (carrés ou cercles) et deux raies (C_8 : symboles pleins, C_9 : symboles vides). Les barres d'erreur ont été estimées à environ 10% (valeur relative). L'erreur sur la valeur de M expérimentale provient du mauvais rapport signal sur bruit du signal R.M.N. pour les faibles valeurs de M mesurées. L'erreur sur la valeur de M théorique provient essentiellement de la

(1) τ_{dep} est le temps caractéristique de dépolarisation de l'état excité 2^3P (cf. § II-1-4).

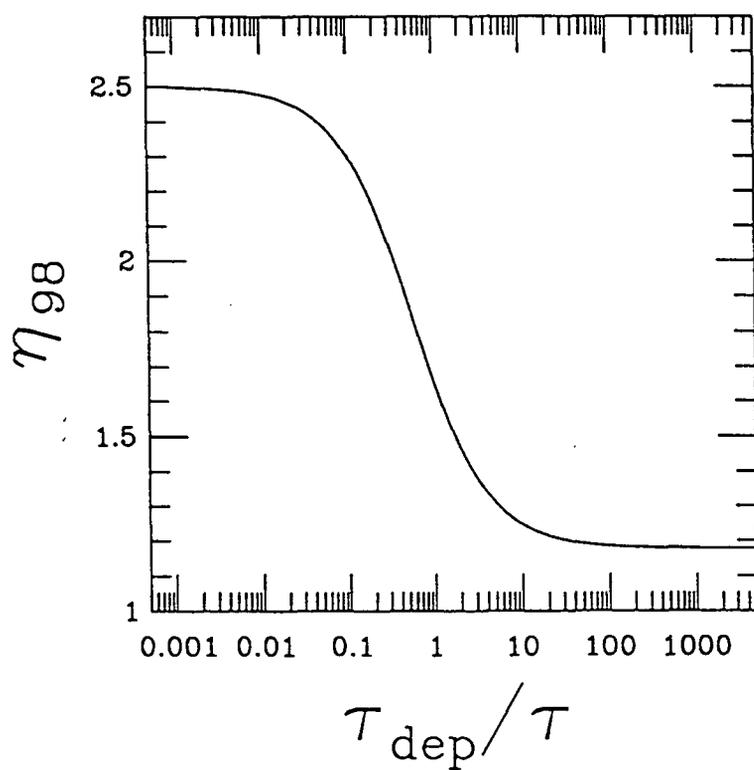
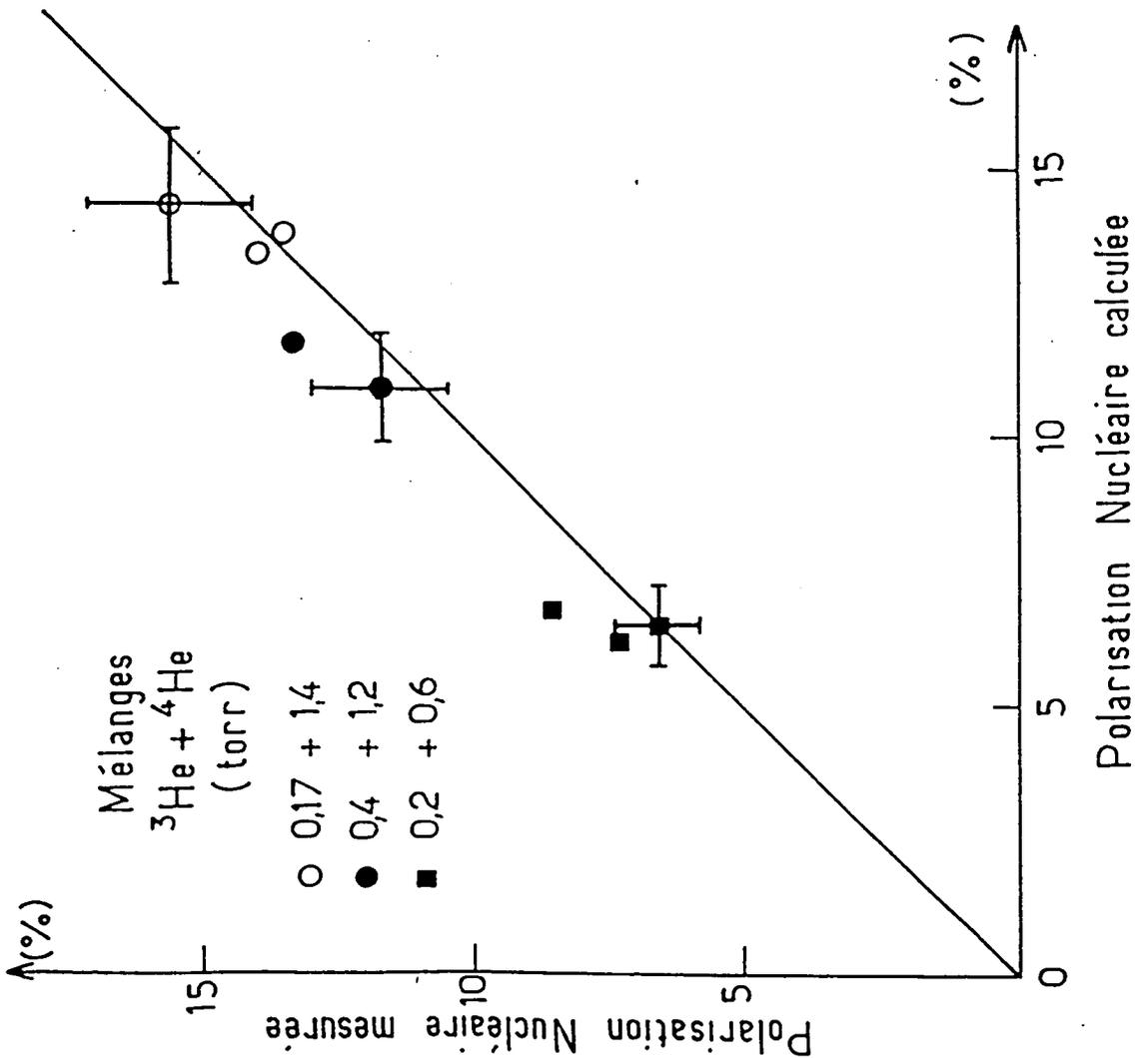


Figure II-15

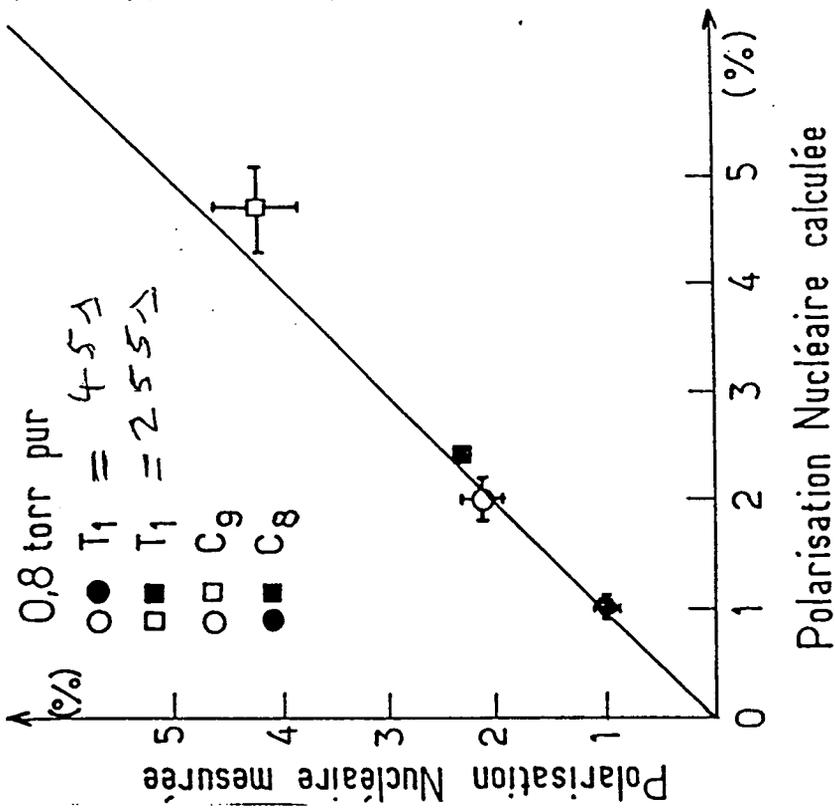
Rapport η_{98} de la polarisation nucléaire obtenue pour une même puissance laser absorbée pour un pompage sur C_9 et un pompage sur C_8 en fonction du rapport τ_{dep}/τ (cf. texte).

Comparaison des résultats numériques aux résultats expérimentaux dans le régime linéaire. En a : résultats pour trois mélanges différents en pompage sur D_0 . En b : résultats pour 0,8 torr d'hélium-3 pur pour deux niveaux de décharges différents, en pompage sur C_8 (symboles pleins) ou C_9 (symboles creux).

~~7-6-8~~
 a



~~7-6-8~~
 b



détermination de la puissance laser absorbée AI . L'accord entre la théorie et l'expérience est tout à fait satisfaisant, tous les points de la figure II-16 s'alignant sur une droite de pente 1. Les taux de polarisation nucléaires les plus élevés ont toujours été obtenus pour les décharges les plus faibles (nous l'avons vérifié pour diverses pressions totales et diverses concentrations en hélium-3 et hélium-4). Dans l'hélium-3 pur, le pompage sur C_9 est plus efficace que sur C_8 , comme on peut le vérifier sur les formules (II-34b) et (II-34c) et ceci quelque soit la pression. Enfin, pour une même pression totale, le pompage optique sur les mélanges est plus performant que le pompage optique dans l'hélium-3 pur pour obtenir de fortes polarisations nucléaires (0,8 torr total, rapport hélium-3/hélium-4 = 1/3), comme on peut le voir sur la figure II-17. Le calcul a été mené avec $x=0,01$ (fraction pompante), ce qui correspond à peu près à un laser monomode dont le faisceau est étalé sur toute la cellule.

Une comparaison très précise entre deux cellules différentes (soit par leur pression soit par leur composition isotopique) est difficile, les conditions de la décharge (T_1 et densité de métastables) ne pouvant pas être expérimentalement identiques.

II-6) Résultats numériques et expérimentaux à forte puissance laser

II-6-1) Dispositif expérimental

Le dispositif expérimental est représenté sur la figure II-18.

Le laser LNA de puissance décrit au chapitre I sert pour le pompage optique. Sa divergence naturelle et son éloignement de la cellule ($\sim 4m$) suffisent pour obtenir un faisceau de trois centimètres de diamètre environ, valeur très bien adaptée pour des cellules de $5cm$ de diamètre. En effet, la concentration en métastables s'annule sur les bords de la cellule. Il est donc plus intéressant de n'éclairer que la zone centrale de la cellule. Le laser est polarisé rectilignement. Pour limiter toute perte de la polarisation du faisceau, tous les renvois du faisceau laser sont à 90° dans le plan parallèle ou perpendiculaire à la polarisation avec des miroirs métalliques. La lame $\lambda/4$ est placée après le dernier renvoi. Elle est en quartz et a un diamètre de $4cm$.

Les mesures d'absorption sont réalisées avec le laser monomode décrit précédemment (cf. § II-3-1). Celui-ci traverse la cellule légèrement en biais pour des raisons d'encombrement géométrique (cf. figure II-18). Le faisceau sonde a une polarisation σ (polarisation rectiligne perpendiculaire au plan défini par B_0 et le faisceau sonde), seule polarisation pouvant être pure avec un faisceau ni parallèle ni perpendiculaire à B_0 .

II-6-2) Influence des paramètres mal connus sur les résultats numériques

Nous analysons ici l'importance, effective ou non, de paramètres peu ou mal connus du modèle sur les résultats numériques.

T_r , τ_r et T_1 sont reliés par la formule (II-20). T_1 étant mesuré expérimentalement, T_r et τ_r ne peuvent pas prendre n'importe quelle valeur. Les courbes de la figure II-19 correspondent à une même valeur de T_1 (200s) obtenues avec les deux valeurs extrémales de τ_r envisageables, T_r étant alors ajusté pour que la relation (II-20) soit vérifiée. Ainsi, la courbe en trait plein correspond à $\tau_r = 4\tau_d$ (τ_d : temps de diffusion du métastable vers la paroi) et la courbe en traits pointillés correspond à $\tau_r = \left(\frac{11}{3} \frac{n_3}{N_3} + \frac{17}{6} \frac{n_4}{N_3}\right) T_1$ (et $T_r = \infty$). On constate ainsi une différence entre les valeurs de la polarisation nucléaire obtenue de l'ordre de 5% seulement en valeur relative. Aussi, choisissons-nous désormais τ_r de l'ordre de τ_d .

L'effet de la fraction d'atomes métastables effectivement couplée au laser ($x = \frac{n_4}{n_3}$) est présenté sur la figure II-20 où sont reportées les valeurs de la polarisation nucléaire en fonction de la puissance laser incidente en pompage optique sur D_0 pour trois valeurs de x : 1, 10^{-1} et 10^{-2} . On constate ainsi que la position du "plateau" atteint à forte puissance laser par la polarisation nucléaire varie

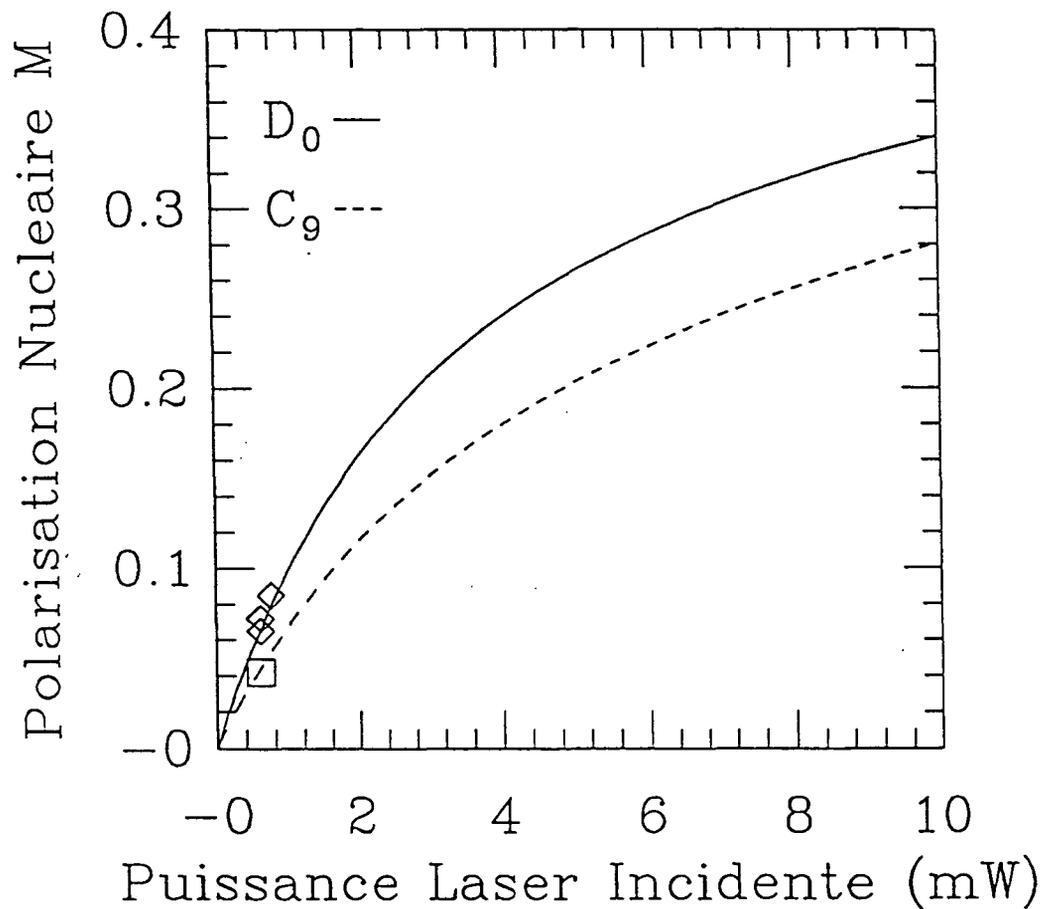


Figure II-17

Comparaison du pompage optique entre l'hélium-3 pur et un mélange pour des valeurs de paramètres (déterminés expérimentalement) aussi similaires que possible. Hélium-3 pur : pression de $0,8 \text{ torr}$; $\frac{n}{N} = 1,2 \cdot 10^{-6}$; $T_r = 600 \text{ s}$, $\tau_r = 2 \text{ ms}$, $\frac{\tau_{dép}}{\tau} = 7$. Mélange : $0,2 \text{ torr}$ d'hélium-3 et $0,6 \text{ torr}$ d'hélium-4 ; $\frac{n}{N} = 0,6 \cdot 10^{-3}$; $T_r = 300 \text{ s}$, $\tau_r = 2 \text{ ms}$. Dans les deux cas, $x = \frac{n^*}{n} = 0,01$.

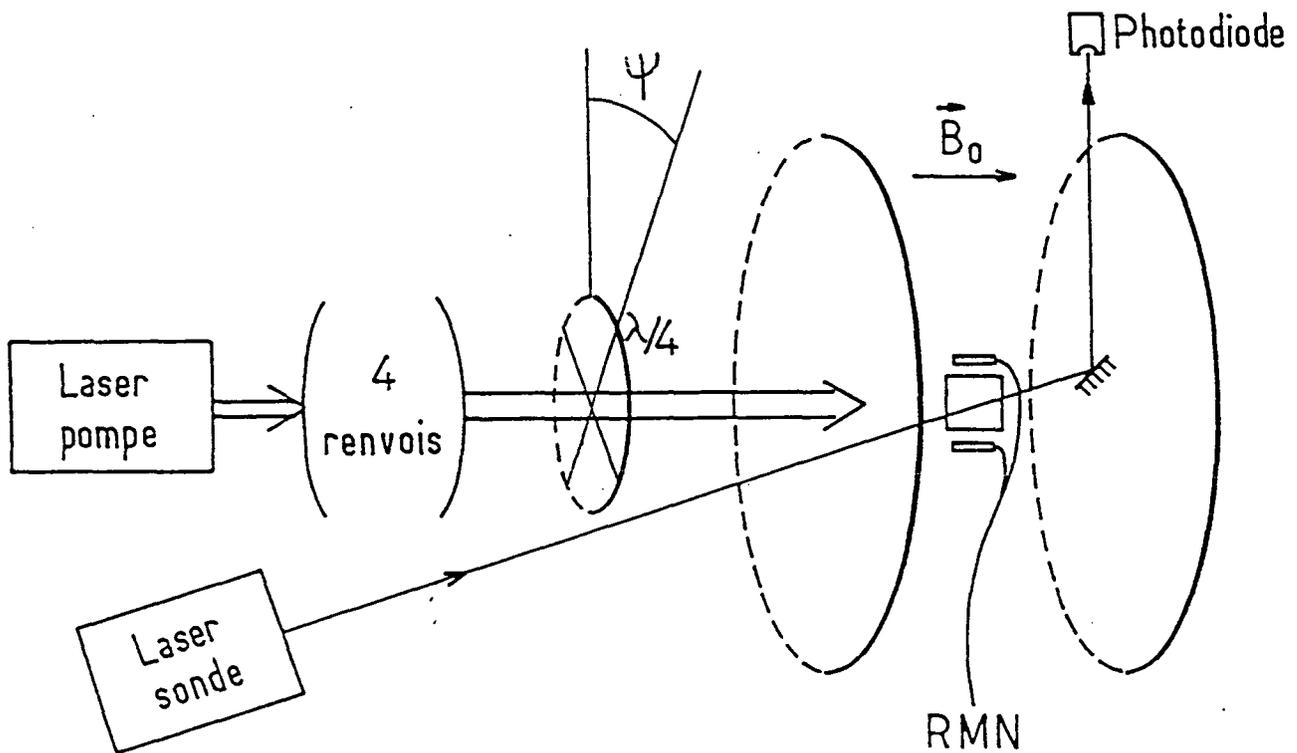


Figure II-18

Figure d'ensemble des expériences de pompage optique à forte puissance laser. Le laser sonde sert à mesurer la densité de métastables.

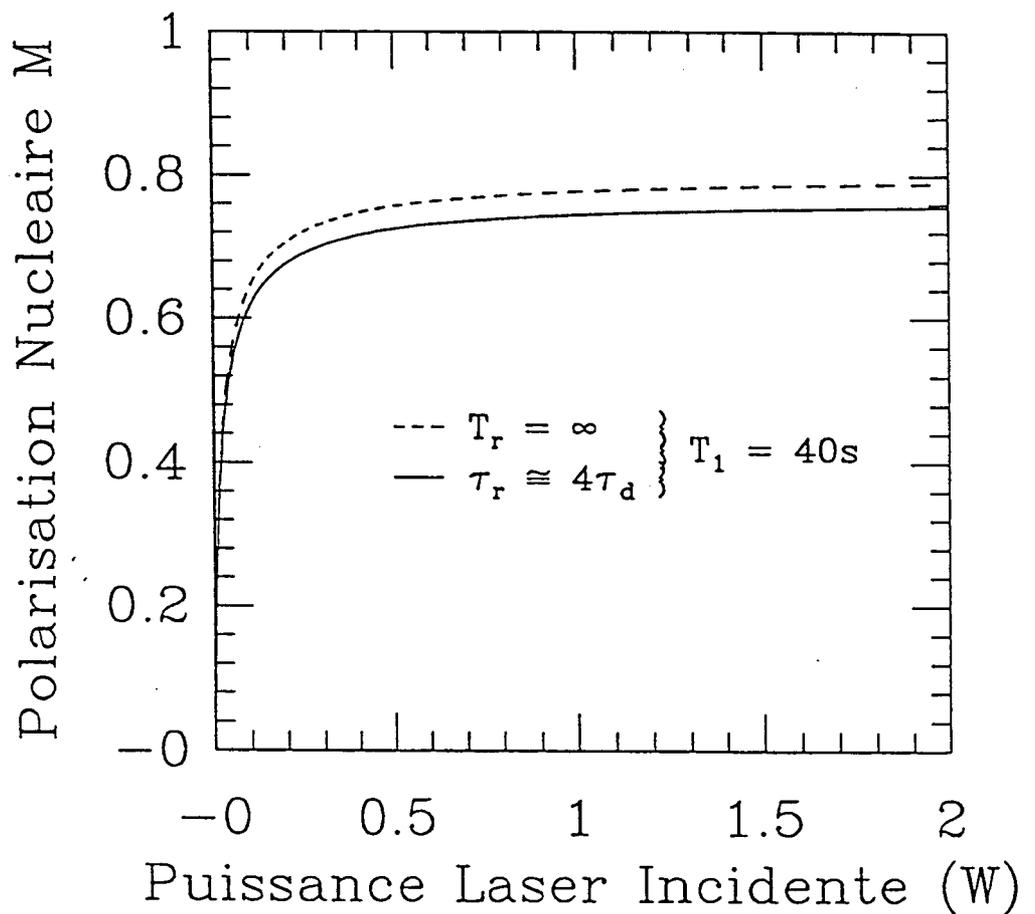


Figure II-19

Effet sur la polarisation nucléaire de la répartition de la relaxation entre les métastables (τ_r) et les atomes dans l'état fondamental (T_r) pour une même relaxation totale T_1 . Paramètres communs : $T_1 = 40s$; $0,2\text{torr}$ d'hélium-3 ; $0,6\text{torr}$ d'hélium-4 ; $\frac{n}{N} = 10^{-6}$; $x = 0,2$; composante D_0 . Traits pleins : $T_r = 45s$; $\tau_r = 5ms$. Traits pointillés : $T_r = \infty$; $\tau_r = 0,5ms$.

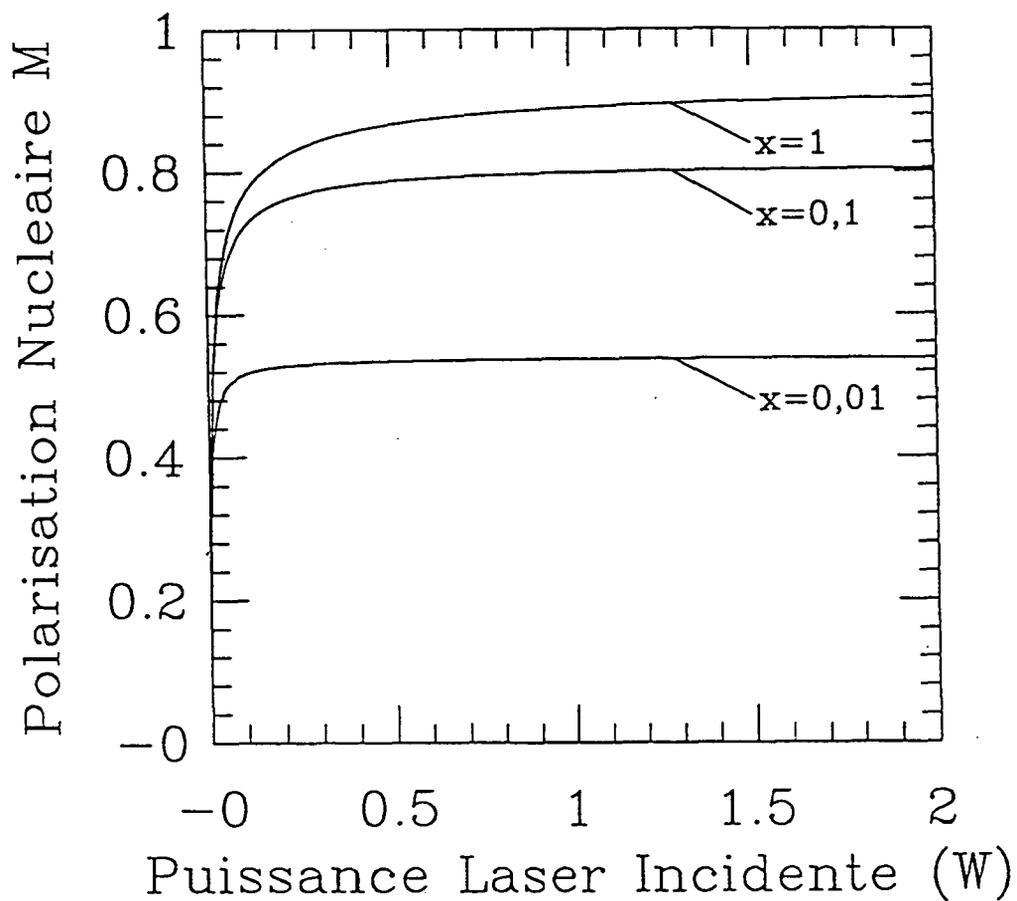


Figure II-20

Effet sur la polarisation nucléaire de la fraction de métastables effectivement couplée au laser. Paramètres : 0,2torr d'hélium-3 ; 0,6torr d'hélium-4 ; $\frac{\sigma}{N} = 10^{-6}$; $T_1 = 100s$ ($T_r = 200s$ et $\tau_r = 2,5ms$) ; composante D_0 .

beaucoup avec la valeur de x . La plage de variation de x est différente de celle explorée dans le paragraphe relatif aux faibles puissances laser. En effet, le laser utilisé dans cette partie est spectralement large et est étalé sur une surface plus grande que dans le cas précédent. Dans ces conditions, la valeur de x pour ce laser utilisé dans ces conditions est de l'ordre de 0,1 contre environ 10^{-3} dans le paragraphe précédent.

Ces calculs ont été menés pour un mélange d'hélium-3 et d'hélium-4, mais les résultats sont tout à fait similaires dans le cas de l'hélium-3 pur.

II-6-3) Effet du taux de polarisation circulaire du faisceau laser

Un autre paramètre très important à forte puissance laser qui n'a pas encore été évoqué est le taux de polarisation circulaire réel du faisceau laser de pompe. Définissons le rapport η_σ ($\eta_\sigma \leq 1$) par :

$$\eta_\sigma = \frac{\text{puissance lumineuse de l'onde } \sigma^-}{\text{puissance lumineuse de l'onde } \sigma^+} \quad (II - 36)$$

$\eta_\sigma = 0$ correspond à un faisceau totalement polarisé circulairement σ^+ et $\eta_\sigma = 1$ correspond à un faisceau totalement polarisé rectilignement. Sur la figure II-21 sont reportées les valeurs de la polarisation nucléaire en fonction de la puissance laser incidente en pompage optique sur D_0 pour quatre valeurs de η_σ (0 ; 0,1% ; 1% ; 5%). Pour une puissance laser infinie et $\eta_\sigma \neq 0$, la différence de puissance entre les deux polarisations du faisceau laser ne joue plus aucun rôle et ne peut donc créer aucune polarisation nucléaire. Une polarisation nucléaire non-nulle est obtenue à puissance laser finie du fait de la différence de puissance des deux polarisations circulaires. Il existe ainsi à η_σ donné non-nul, une puissance laser optimale permettant d'obtenir la plus forte polarisation nucléaire possible dans ces conditions. Par exemple, dans le cas de la figure II-21, cet optimum se trouve à une puissance d'environ 250mW pour $\eta_\sigma = 1\%$ et 900mW pour $\eta_\sigma = 0,1\%$. Dans le cas idéal où $\eta_\sigma = 0$, la situation est différente : la polarisation nucléaire ne cesse de croître pour atteindre asymptotiquement une valeur limite caractéristique du compromis entre un pompage optique infiniment efficace, le temps d'échange de métastabilité et les diverses relaxations existants pour les atomes dans les états fondamental, métastable et excité.

La sensibilité à η_σ dépend de la raie sur laquelle est effectué le pompage optique. Ainsi, sur la figure II-22 sont reportés les résultats pour les raies C_8 et C_9 dans l'hélium-3 pur pour des conditions identiques et deux valeurs de η_σ : 0 et 1%. On constate ainsi que le pompage optique sur la raie C_9 est beaucoup plus sensible à η_σ que sur la raie C_8 . Cette différence s'explique en considérant les sous-niveaux mis en jeu pour C_8 et C_9 et les forces d'oscillateur des diverses transitions (cf. figure II-23). Pour C_9 , une forte polarisation nucléaire est obtenue en accumulant les métastables principalement dans les sous-niveaux $m_F = +\frac{3}{2}$ qui n'est couplé qu'au niveau excité $|2^3P, F = \frac{1}{2}, m_F = +\frac{1}{2}\rangle$. La force d'oscillateur de la transition polarisée σ^- vers ce niveau est trois fois plus forte que celle de la transition polarisée σ^+ . Aussi l'effet de la fraction de lumière polarisée σ^- est plus important (dépeuplement du niveau $|2^3S_1, F = \frac{3}{2}, m_F = \frac{3}{2}\rangle$) sur C_9 que pour le pompage optique sur C_8 où les transitions σ^+ et σ^- ont la même force d'oscillateur.

Nous avons mis en évidence expérimentalement l'effet de η_σ en tournant d'un angle ψ la lame $\lambda/4$ utilisée pour polariser le faisceau laser (cf. figure II-18) et en mesurant pour chaque valeur de ψ la polarisation nucléaire M obtenue. Pour $\psi = \psi_0$, M est maximale : la position ψ_0 correspond à placer les axes de la $\lambda/4$ à 45° de la polarisation rectiligne du faisceau laser incident. Un écart angulaire $\psi - \psi_0$ revient à créer une polarisation elliptique et non-circulaire, dont le rapport $\eta_\sigma(\psi)$ vaut :

$$\eta_\sigma(\theta) = \text{tg}^2(\psi - \psi_0) \quad (II - 37)$$

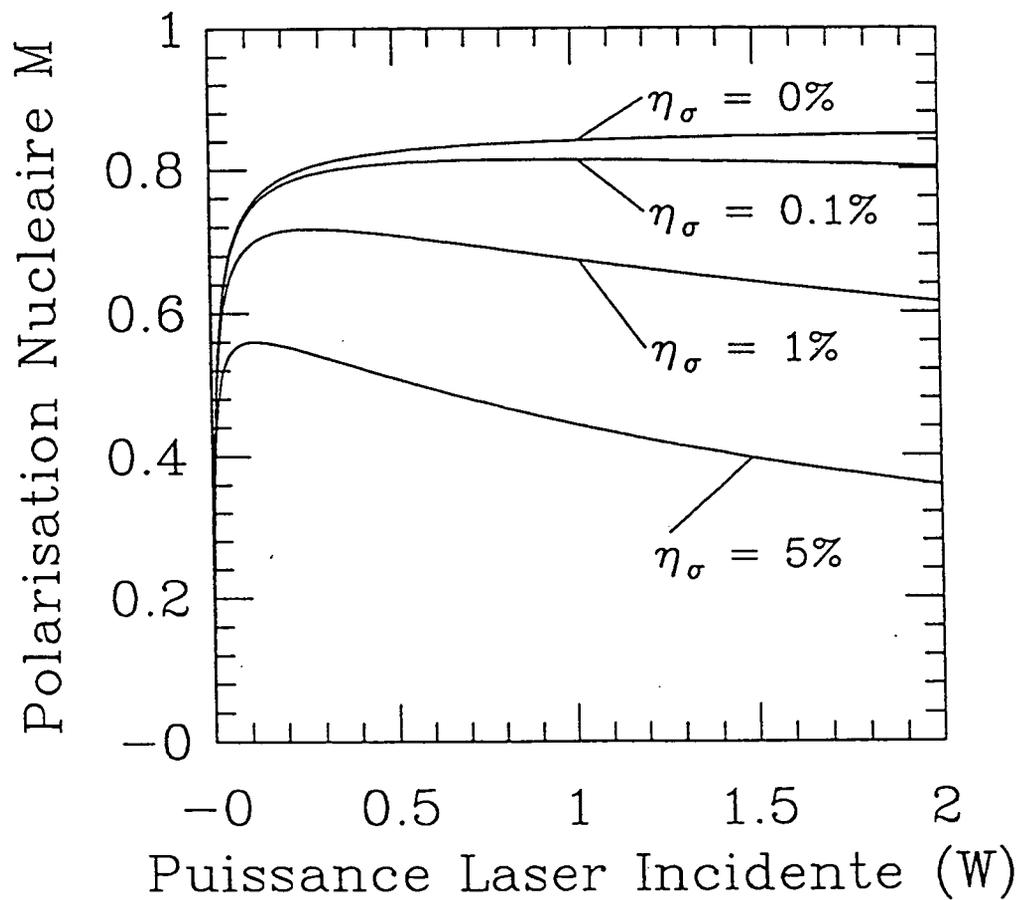


Figure II-21

Effet sur la polarisation nucléaire du taux de polarisation circulaire du faisceau laser η_σ (cf. formule II-36). Paramètres identiques à la figure II-20 avec $x=0,2$.

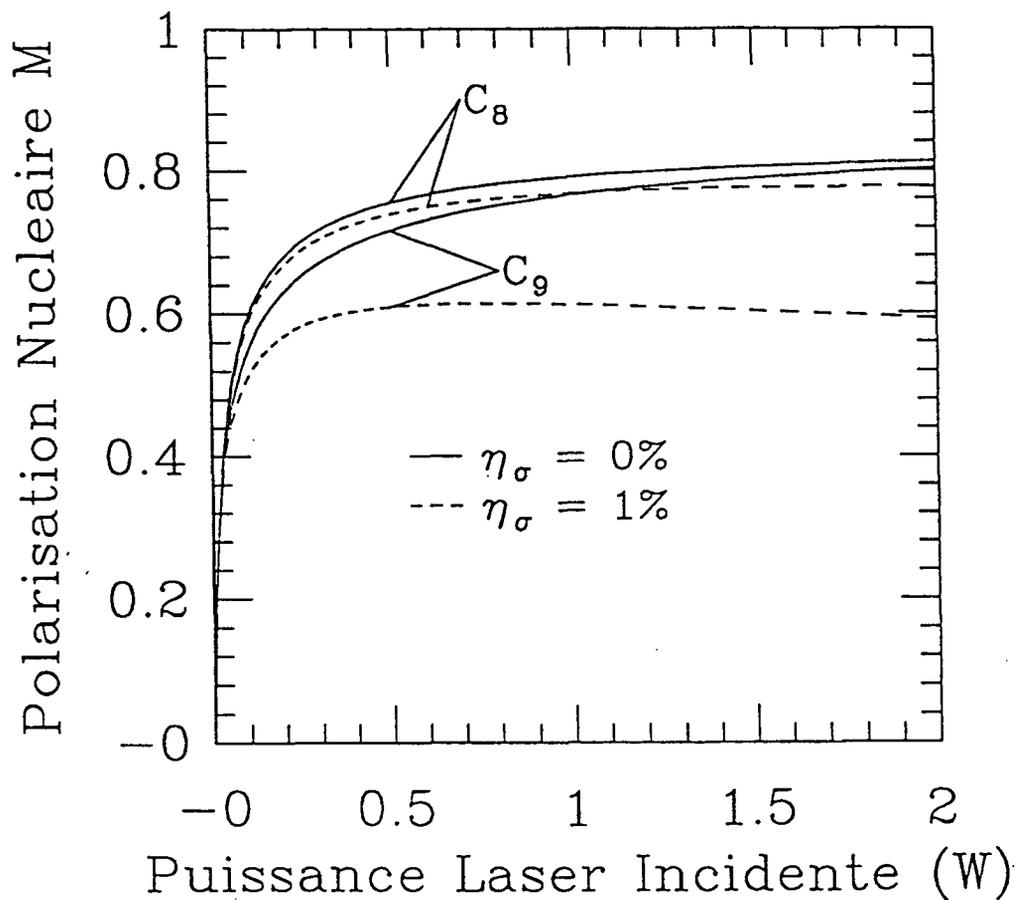
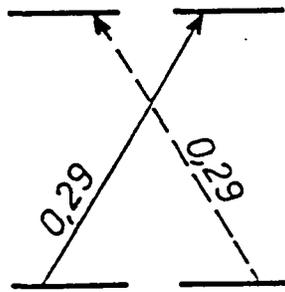


Figure II-22

Effet sur la polarisation nucléaire du taux de polarisation circulaire du faisceau laser η_σ .
 Comparaison entre deux transitions de l'hélium-3 pur : C₈ et C₉. Paramètres : 0,8 torr
 d'hélium-3 pur ; $\frac{n}{N} = 1,2 \cdot 10^{-6}$; $x = 0,2$; $T_1 = 160s$ ($T_r = 500s$ et $\tau_r = 1ms$) ; $\frac{\tau_{dep}}{\tau} = 7$.

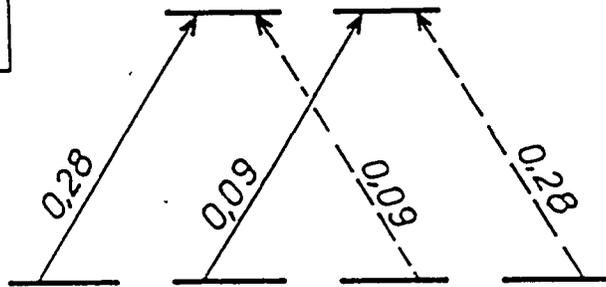
C_8



$2^3P ; F = \frac{1}{2}$

$2^3S_1 ; F = \frac{1}{2}$

C_9



$2^3P ; F = \frac{1}{2}$

$2^3S_1 ; F = \frac{3}{2}$

Figure II-23

Force d'oscillateurs pour les transitions C_8 et C_9 en polarisation σ^+ (traits pleins) et σ^- (traits pointillés).

Ce résultat est obtenu en supposant que le faisceau laser est polarisé rectilignement à 100% et que la lame $\lambda/4$ est parfaite. Nous avons réalisé l'expérience pour une cellule à mélange (0,2torr d'hélium-3 + 0,6torr d'hélium-4) en pompage optique sur D_0 et pour une cellule d'hélium-3 pur (0,8torr) en pompage sur C_8 et sur C_9 . Les résultats sont reportés figure II-24a (pour le mélange) et II-24b (pour l'hélium-3 pur), les symboles correspondant aux points expérimentaux, les courbes (en pointillés sur C_9) aux résultats du calcul. Les calculs ont été menés en ajustant uniquement le rapport x de la fonction de métastable effectivement couplée au laser (x a été ajusté séparément pour les résultats de la cellule à mélange et pour ceux de la cellule à hélium-3 pur). Nous avons supposé que le défaut résiduel de la polarisation circulaire pour $\psi = \psi_0$ (dû aux imperfections de la lame $\lambda/4$ ou de la face d'entrée de la cellule par exemple) peut être décrit par un terme constant η_σ^0 s'ajoutant à $\eta_\sigma(\psi)$. On obtient ainsi :

$$\eta_\sigma = \eta_\sigma^0 + \eta_\sigma(\psi) \quad (II - 38)$$

L'accord entre la théorie et l'expérience est tout à fait satisfaisant pour $\eta_\sigma^0 = 0,2\%(\pm 0,1\%)$. Cette valeur de η_σ^0 prouve que le faisceau laser (pour $\psi = \psi_0$) est très bien polarisé circulairement, démontrant a posteriori les bonnes qualités optiques des miroirs de renvoi du faisceau laser, de la lame $\lambda/4$ et de la face d'entrée de la cellule. Ce dernier point a été confirmé en intercalant entre la lame $\lambda/4$ et la cellule de pompage une deuxième cellule (pas de décharge allumée). Il n'a été observé aucun effet significatif de détérioration de la polarisation nucléaire M lié à la dépolarisation éventuelle par les faces de la cellule.

Malgré la faible valeur de η_σ^0 , la polarisation nucléaire obtenue en pompage optique sur C_9 n'est plus que de 77% contre 90% prévu avec $\eta_\sigma = 0$. Ainsi, même si C_8 et C_9 donnent sensiblement les mêmes valeurs de polarisation nucléaire à $\eta_\sigma = 0$, la bien moins grande sensibilité à η_σ de C_8 impose de fait cette raie pour le pompage optique à forte puissance laser.

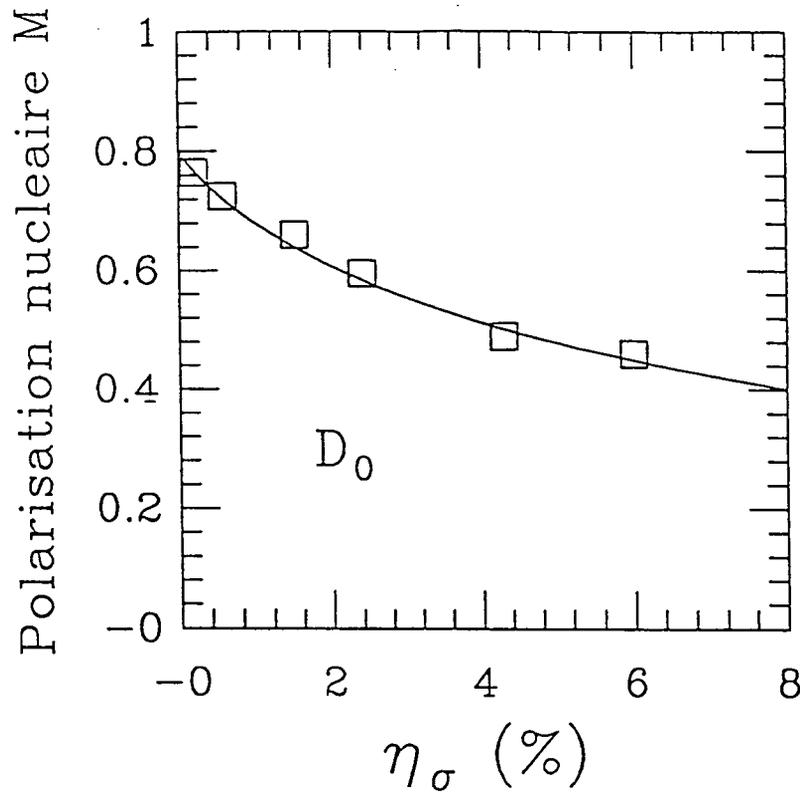
Une autre source de lumière dépolarisée est la fluorescence des atomes excités. La puissance optique émise par ce processus est égale à la puissance laser perdue par la traversée du gaz. D'après nos mesures, l'absorption est inférieure à 10% et nos calculs montrant que pour une puissance du laser pompe de 1W, la puissance absorbée est de l'ordre du milliwatt. Ainsi, le rapport η_σ^{abs} de ce phénomène vaut environ un dix-millième (0,01%). Donc, même si ce phénomène est présent dans notre expérience, il est masqué par la mauvaise polarisation du faisceau pompe.

II-6-4) Temps de construction de la polarisation nucléaire

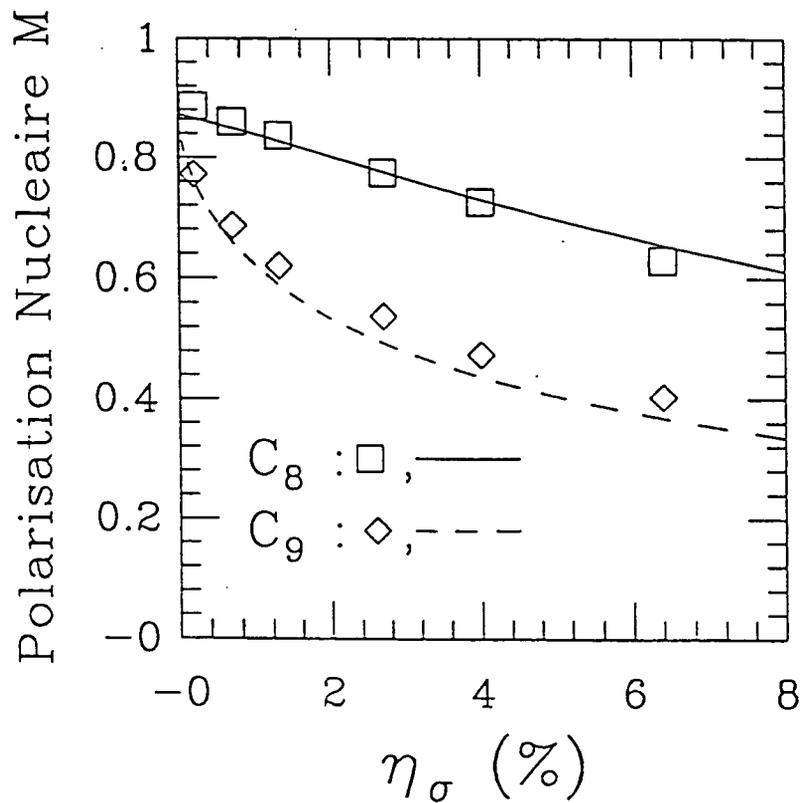
A très faible puissance laser, l'évolution temporelle de la polarisation nucléaire est exponentielle, avec une constante de temps égale au temps de relaxation de la polarisation nucléaire en présence de décharge T_1 []. Nous avons calculé le taux de pompage instantané $\gamma_p(t)$ défini par :

$$\gamma_p(t) = \frac{1}{M_{max} - M(t)} \cdot \frac{d}{dt} (M_{max} - M(t)) \quad (II - 39)$$

où M_{max} est la valeur de la polarisation nucléaire atteinte dans le régime stationnaire. $\gamma_p(t)$ est reporté sur la figure II-25 en fonction de $M(t)$, valeur de la polarisation nucléaire à l'instant t pour diverses valeurs de la puissance laser. Si l'évolution temporelle est exponentielle (constante de temps t_0), $\gamma_p(t)$ est une constante égale à t_0^{-1} . Ainsi, pour une puissance de 0,1mW, $\gamma_p(t)$ est trouvé égal à $\frac{1}{T_1}$ dans le cas illustré figure II-25. En revanche, pour des puissances supérieures, $\gamma_p(t)$ n'est plus constant : il diminue continûment entre $M = 0$ et $M = M_{max}$. Cela est dû à la diminution de l'absorption du faisceau laser à cause du dépeuplement de l'état $|2^3S_1; m_J = -1\rangle$ par le pompage optique. Ainsi, à forte puissance laser, plus on se rapproche de la valeur asymptotique de M , plus le temps de pompage (inverse de $\gamma_p(t)$) devient long, tout en restant inférieur à T_1 .



a.



b.

Figure II-24

Résultats expérimentaux et numériques de taux de polarisation nucléaire en fonction de η_σ . En a : mélange 0,2torr hélium-3 et 0,6torr hélium-4 ; pompage sur D_0 (puissance laser = 1W) ; $\frac{n}{N} = 1,7 \cdot 10^{-6}$; $x = 0,35$; $T_1 = 25s$ ($T_r = 50s$ et $\tau_r = 1,1ms$). En b : hélium-3 pur (0,8torr) ; $\frac{n}{N} = 1,2 \cdot 10^{-6}$; $x = 0,2$; $T_1 = 390s$ ($T_r = 1400s$ et $\tau_r = 2,4ms$) ; $\frac{\tau_{dés}}{\tau} = 7$; puissance laser = 1,5W. Pompage sur C_8 (trait plein) et C_9 (traits pointillés).

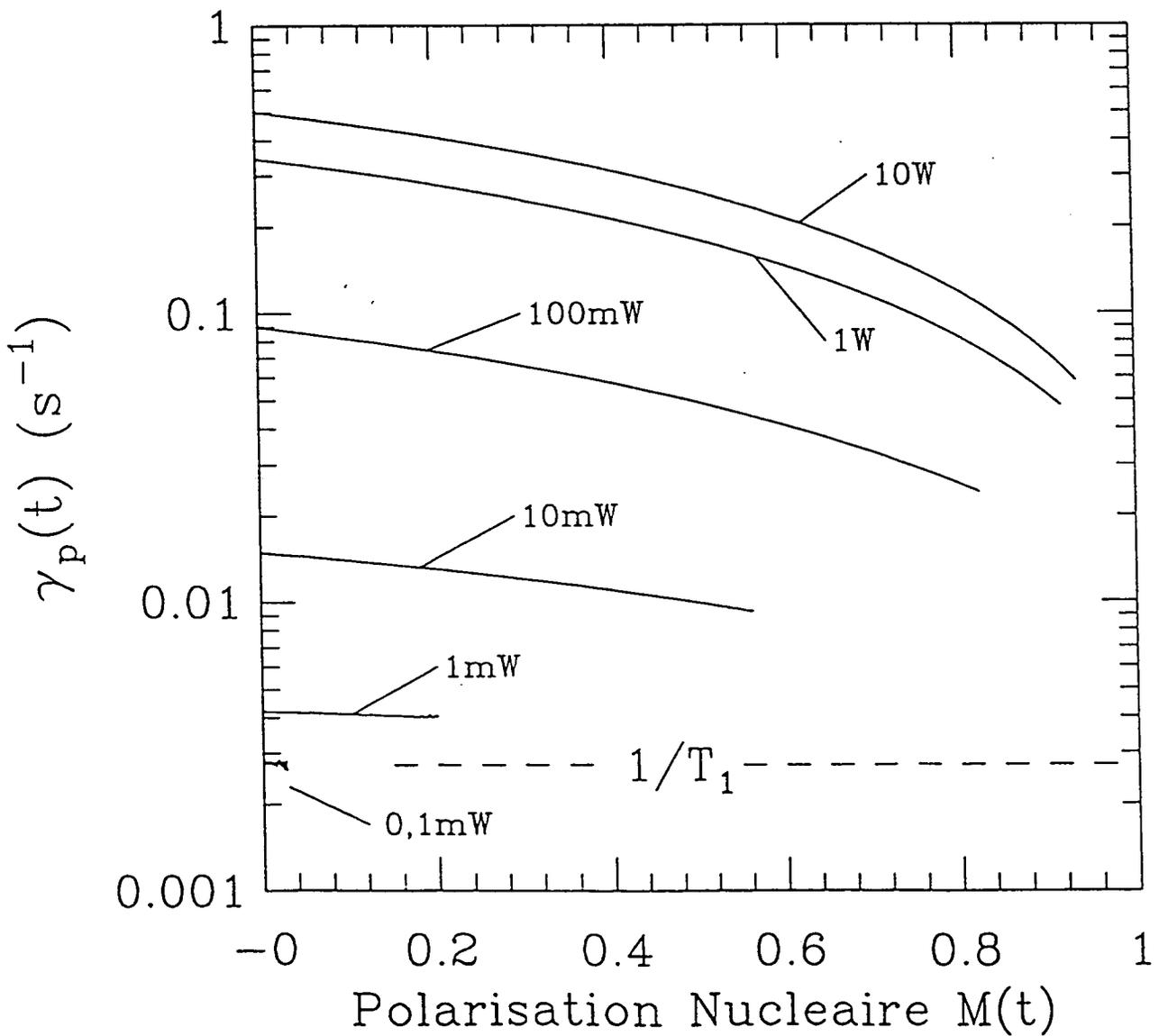


Figure II-25

Taux de pompage instantané $\gamma_p(t)$ fonction de la polarisation nucléaire M atteinte à l'instant t pour diverses puissances laser.

Nous avons mesuré expérimentalement l'évolution temporelle dans une cellule à mélange (1,4torr hélium-3 + 0,5torr hélium-4) en pompage optique sur D_0 . Les mesures ont été effectuées régulièrement par R.M.N. pendant que le laser était allumé. Pour ne pas détruire la polarisation nucléaire, les impulsions radiofréquence avaient une énergie 16 fois plus faible que celle requise pour détruire la polarisation à 100% : dans ce cas, la perte en polarisation est de l'ordre de 0,5% (valeur relative). Les résultats sont reportés sur la figure II-26. L'erreur sur la polarisation nucléaire a été estimée à 10%, à cause du mauvais rapport signal sur bruit. La courbe en trait plein correspond au résultat du calcul numérique.

II-6-5) Quelques résultats expérimentaux

Dans ce paragraphe, nous présentons uniquement des résultats expérimentaux relatifs premièrement aux meilleurs taux de polarisation que nous ayons obtenus à ce jour et deuxièmement à l'effet du niveau de décharge sur le taux de polarisation nucléaire obtenue et sur son temps de construction.

Les meilleurs taux de polarisation que nous ayons observés à ce jour à forte puissance laser sont reportés sur la figure II-27 fonction de la pression totale du gaz. Les croix correspondent à de l'hélium-3 pur (pompage optique sur C_8 ou C_9) et les cercles à des mélanges contenant un quart d'hélium-3 (pompage optique sur D_0). Ces résultats ont tous été obtenus pour les niveaux de décharge les plus faibles possibles avec notre appareillage. A pression élevée, l'efficacité du pompage optique diminue beaucoup par rapport aux pressions plus faibles essentiellement à cause de la forte diminution de la densité relative de métastable par rapport aux atomes dans l'état fondamental ($\frac{n}{N}$, cf. § I-3-3). Dans le cas du pompage optique sur des mélanges, la situation est différente. En effet, bien que le rapport $\frac{n}{N}$ global diminue avec la pression dans un mélange comme dans de l'hélium-3 pur, le paramètre important dans un mélange est le rapport de la densité de métastables d'hélium-4 (où s'effectue le pompage optique) à la densité d'hélium-3 dans l'état fondamental ($\frac{n_4}{N_3}$). Dans un mélange contenant trois fois plus d'hélium-4 que d'hélium-3, on a (d'après la formule II-4) :

$$\frac{n_4}{N_3} = \frac{3n_3}{N_3} = 3 \frac{n}{N} \quad (II - 40)$$

Ainsi, dans un tel mélange, si la densité totale de métastable est la même que dans l'hélium-3 pur à la même pression, chaque atome d'hélium-3 dans l'état fondamental est couplé à trois fois plus d'atomes résonnants avec le laser de pompe. L'efficacité du pompage optique par rapport au cas de l'hélium-3 pur est ainsi plus grande pour les mélanges à forte pression.

L'effet du niveau de décharge a été également étudié. Pour caractériser l'intensité de la décharge, nous utilisons simplement l'inverse du temps de relaxation de la polarisation nucléaire (T_1 , cf. § II-1-4) ⁽¹⁾. Les valeurs de ce paramètre ne doivent pas être considérées comme ayant un caractère autre qu'indicatif sur le classement relatif de différentes décharges. En effet, modifier la décharge se traduit non seulement par un changement de la valeur de T_1 , mais également par la variation d'autres paramètres, et notamment la densité de métastable. Sur la figure II-28 sont reportés les taux de polarisation nucléaire M obtenus dans une cellule d'hélium-3 pur (0,8torr) pour une puissance laser de trois watts en fonction du paramètre $\frac{1}{T_1}$ (croix). Plus la décharge est faible, plus M augmente, démontrant ainsi que l'effet positif de la diminution des relaxations est plus important que l'effet négatif de la diminution de la densité de métastable. Nous avons également défini un temps de pompage T_p correspondant au temps nécessaire pour que M passe de 0 à 90% de sa valeur asymptotique. Les résultats expérimentaux sont aussi reportés sur la figure II-28

⁽¹⁾ Plus une décharge est intense, plus T_1 est petit.

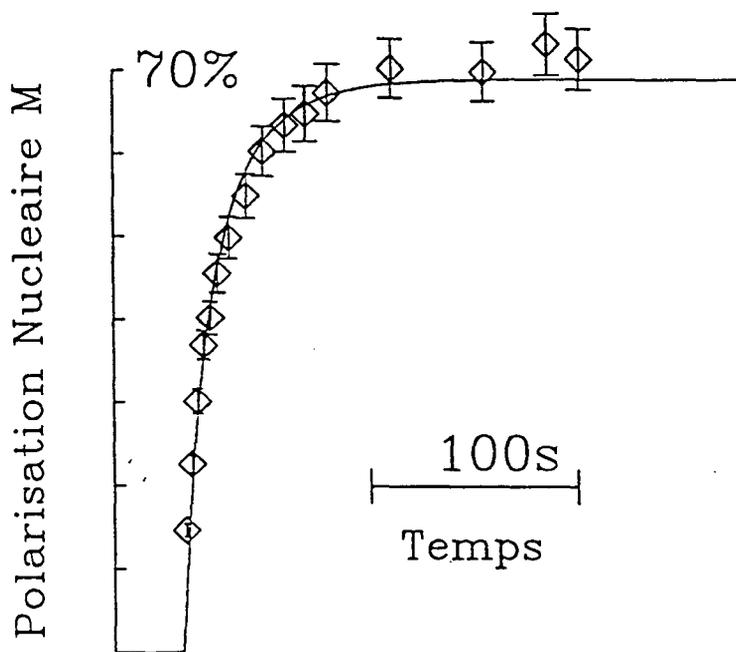


Figure II-26

Evolution temporelle de la polarisation nucléaire M , résultats expérimentaux et numériques. Paramètres : 1,4torr d'hélium-3 et 5torr d'hélium-4 ; $\frac{n}{N} = 0,06 \cdot 10^{-6}$; $\alpha = 0,11$; pompage sur D_0 (puissance laser = 1,5W) ; $T_1 = 160s$ ($T_r = 180s$; $\tau_r = 1,5ms$) ; $\eta_\sigma = 0,2\%$.

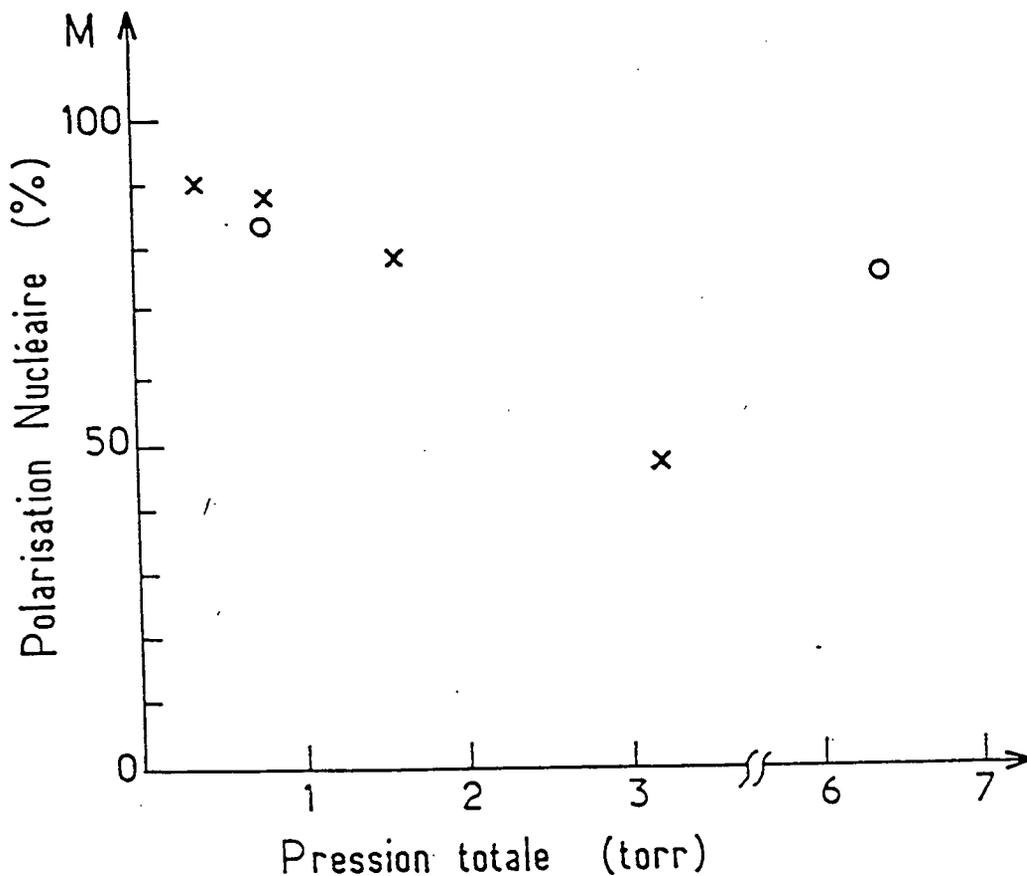


Figure II-27
 Meilleurs taux de polarisation observés à forte puissance laser ($\sim 3W$) en fonction de la pression totale dans la cellule. Croix : hélium-3 pur (trois points à basse pression : pompage sur C_8 ; le quatrième sur C_9) ; cercles : mélanges $\frac{1}{4}$ hélium-3, $\frac{3}{4}$ hélium-4 (le point à 6,4torr a été obtenu avec une puissance laser de 1,5W).

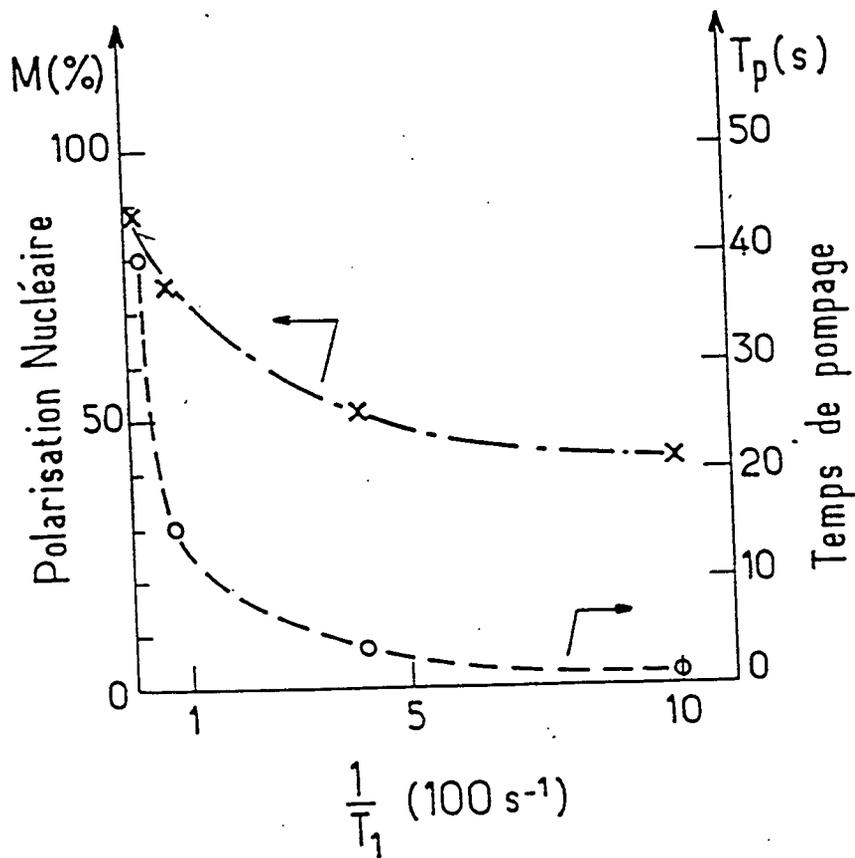


Figure II-28
 Taux de polarisation nucléaire M (croix) et temps de pompage T_p (cercles) fonction de l'inverse du temps de relaxation nucléaire en présence de décharge T_1 .

(cercles). Diminution du temps de relaxation T_1 et augmentation du nombre de métastable se conjuguent pour que le pompage optique soit plus rapide à atteindre son équilibre. Ainsi, il faut adapter le niveau de décharge suivant les besoins particuliers de chaque expérience (taux de polarisation, vitesse de pompage). Dans notre équipe, un temps de pompage de l'ordre de la minute n'est pas restrictif pour les expériences actuelles et c'est donc les décharges les plus faibles possibles que nous employons. Pour des expériences de cibles nucléaires où l'hélium-3 est comprimé par un piston après avoir été polarisé, le facteur vitesse de pompage est crucial (il détermine le nombre de cycles de compressions possibles). Dans ce cas, il peut être avantageux d'augmenter un peu le niveau de la décharge, le temps de pompage pouvant être très réduit pour un taux de polarisation nucléaire juste un peu dégradé (cf. figure II-28).

II-7) Conclusion

Les expériences que nous avons menées nous ont permis de valider le modèle du pompage optique dans les mélanges hélium-3/hélium-4 et de mettre en évidence certains paramètres critiques pour obtenir un pompage optique optimal (taux de polarisation optique du faisceau pompe, décharge). Plusieurs points pourraient être étudiés pour enrichir ces résultats. D'un point de vue théorique, il faudrait intégrer au modèle le phénomène de réabsorption des photons de fluorescence par les métastables. Cet effet intervient à forte pression et à très forte puissance laser et à condition que cet effet ne soit pas masqué par une mauvaise polarisation optique du faisceau laser (cf. § II-6-3).

D'un point de vue expérimental, plusieurs domaines restent ouverts pour optimiser les conditions du pompage optique : rapport isotopique du mélange ; pression totale ; géométrie de la cellule ; fréquence de la décharge et géométrie des électrodes. De même, la structure spectrale du laser actuel n'est peut-être pas la meilleure possible.

Enfin, il reste à réduire l'incertitude sur les mesures de polarisations nucléaires. Pour ce faire, de nouvelles mesures du rapport entre la polarisation nucléaire de l'hélium-3 et du taux de polarisation circulaire de la transition $3^1D \rightarrow 2^1P$ (à 668nm) sont en cours. Elles sont basées sur des mesures d'absorption du laser monomode décrit dans ce chapitre utilisé comme sonde, le pompage optique de l'hélium étant effectué par le laser *LNA* décrit au chapitre I.

CONCLUSION

Nous avons réalisé un laser pour le pompage optique de l'hélium à la fois puissant (plusieurs watts), accordable, de largeur spectrale bien adaptée et stable. Le milieu amplificateur est un matériau laser assez récent : le *LNA*. Il est de plus robuste, de réalisation simple et peu coûteux. Il est excité en continu par deux lampes au krypton. Cette étude nous a apporté également une meilleure connaissance de ce matériau. Les performances de ce laser pourront être augmentée par l'amélioration du matériau ce qui permettrait de déplacer le seuil de rupture thermique vers des valeurs de la puissance d'excitation plus élevée. Dans un avenir plus lointain, le développement de laser à *LNA* pompé par des diodes laser émettant à 797nm (bande d'absorption du néodyme) pourrait s'avérer très prometteur. Ce laser a déjà été reproduit à de nombreux exemplaires de part le monde pour des expériences de Physique Nucléaire (cibles) à l'IPN d'Orsay, à l'Université de Mayence, à Caltech et au M.I.T.

Avec ce laser et grâce à une meilleure compréhension du pompage optique à forte puissance dans l'hélium-3 pur et dans les mélanges hélium-3/hélium-4, nous avons obtenu des polarisations nucléaires de l'hélium-3 jamais encore enregistrée : supérieures à 85% dans l'hélium-3 pur et à 80% dans les mélanges. De tels résultats sont très prometteurs pour l'étude, actuellement menée à l'E.N.S., des solutions d'hélium-3 polarisé dans l'hélium-4 à basse température, mais également pour les applications à température ambiante évoquées dans l'introduction. Ainsi, en couplant l'utilisation de ce laser qui permet d'orienter nucléairement fortement l'hélium-3 en un temps bref et dans un grand volume, il est possible d'obtenir de grandes quantités d'hélium-3 polarisé sous une pression élevée avec une technique de compression. Nous avons également étudié le pompage optique à faible puissance laser à l'aide d'un laser à *LNA* monomode pompé par une barrette de diodes laser. Les polarisations nucléaires obtenues sont plus importantes dans les mélanges que dans l'hélium pur. Pour améliorer encore le pompage optique, il resterait à optimiser principalement les conditions de la décharge pour essayer d'augmenter à la fois les temps de relaxation et la densité de métastables. Pour le cas des mélanges, il faudrait également optimiser le rapport isotopique hélium-3/hélium-4.

APPENDICE A

Calcul de la distance de focalisation d'un barreau avec des faces courbes

Nous allons calculer la distance de focalisation d'un barreau avec des faces courbes pour un mode gaussien TEM_{00} . Je ne rappelle ici que les résultats d'optique gaussienne nécessaires au calcul. Pour une explication plus détaillée, voir par exemple la référence [Verdeyen, 81].

Le mode gaussien TEM_{00} peut être décrit à l'aide de son amplitude complexe $q(z)$ (Oz : axe de propagation). Au niveau d'un "waist" de taille w_0 , l'amplitude complexe vaut :

$$q_{\text{waist}} = -i \frac{\pi w_0^2}{\lambda_0} = -i \frac{z_0}{n} \quad (A-1)$$

où n est l'indice du milieu, λ_0 la longueur d'onde dans le vide et z_0 le paramètre confocal, caractérisant le mode. La propagation du faisceau entre deux points z et z' s'écrit sous la forme :

$$q(z') = \frac{A q(z) + B}{C q(z) + D} \quad (A-2)$$

où A, B, C et D sont réels et décrivent le système optique compris entre z et z' . Posons :

$$M = \begin{pmatrix} A & B \\ C & D \end{pmatrix} \quad (A-3)$$

Pour une propagation à travers plusieurs éléments, la matrice globale est simplement obtenue par le produit des matrices de chaque élément.

Propagation à travers une région uniforme, de longueur $(z' - z)$ et d'indice n :

$$M = \begin{pmatrix} 1 & \frac{z' - z}{n} \\ 0 & 1 \end{pmatrix} \quad (A-4)$$

Traversée d'un dioptre sphérique de rayon R ($R > 0$ pour un dioptre convexe) d'une région d'indice n_1 vers une région d'indice n_2 :

$$M = \begin{pmatrix} 1 & 0 \\ -\frac{n_2 - n_1}{R} & 1 \end{pmatrix} \quad (A-5)$$

Traversée d'un barreau uniformément chauffé de longueur ℓ et d'indice n [Kogelnick et al, 66] :

$$M = \begin{pmatrix} \cos b & \frac{\ell}{n} \frac{\sin b}{b} \\ -\frac{n}{\ell} b \sin b & \cos b \end{pmatrix} \quad (A-6)$$

avec

$$b = \sqrt{\frac{P_a}{P_0}} \quad (A-7)$$

b caractérise l'échauffement du barreau (cf § I-2 et I-3-1).

Considérons un barreau laser : il est composé de trois systèmes : un dioptre d'entrée, de rayon R_1 ; le barreau lui-même, caractérisé par sa longueur ℓ , son indice et son "échauffement" b ; un dioptre de sortie, de rayon R_2 . Dans notre cas :

$$R_2 = -R_1 = r_c > 0 \quad (A-8)$$

où r_c est le rayon de courbure des faces. Combinant les formules A-5 et A-6, on obtient les coefficients de la matrice totale du barreau laser (cf. A-3) :

$$\begin{aligned} A &= D = \cos b + \frac{n-1}{n} \frac{\ell}{r_c} \frac{\sin b}{b} \\ B &= \frac{\ell}{n} \frac{\sin b}{b} \\ C &= -\frac{n}{\ell} b \sin b + 2 \frac{n-1}{r_c} \cos b + \frac{(n-1)^2}{n} \frac{\ell}{r_c^2} \frac{\sin b}{b} \end{aligned} \quad (A-9)$$

Supposons la présence d'un "waist" sur la face d'entrée du barreau, en $z = 0$. $q(0)$ est alors déterminée par la relation A-1 et $q(\ell)$ par les relations A-2 et A-9. Après la face de sortie ($z = \ell$), la propagation s'effectuant dans l'air ($n = 1$), impose (d'après la relation A-4) :

$$q(\ell + d) = q(\ell) + d \quad (A-10)$$

La présence d'un "waist" en $z = \ell + d$ se traduit par une amplitude complexe $q(\ell + d)$ imaginaire pure. On en déduit que, dans ces conditions :

$$\mathcal{R}e(q(\ell)) = -d \quad (A-11)$$

La partie imaginaire de $q(\ell)$ permet de déterminer la taille du "waist" en $z = \ell + d$ connaissant celle du "waist" situé en $z = 0$. De A-11, on déduit immédiatement :

$$d = -\mathcal{R}e\left(\frac{-iAz_0 + B}{-iCz_0 + D}\right) = -\frac{ACz_0^2 + BD}{C^2z_0^2 + D^2} \quad (A-12)$$

où A, B, C, D sont donnés dans (A-9).

Le cas particulier de l'onde plane sur la face d'entrée correspond à $z_0 \rightarrow +\infty$ (i.e. : un "waist" de taille infinie pour avoir un mode de divergence nulle). On obtient alors simplement :

$$d = -\frac{A}{C} = \frac{\ell}{n} \frac{b + a \operatorname{tg} b}{(b^2 - a^2) \operatorname{tg} b - 2ab} \quad (A-13)$$

avec

$$a = \frac{n-1}{n} \frac{\ell}{r_c} \quad (A-14)$$

a est caractéristique de l'effet du rayon de courbure des faces du barreau. A échauffement nul ($b=0$), la distance de la focalisation d est négative : le faisceau sortant du barreau est divergent à cause des faces concaves. d tend vers l'infini pour des valeurs b_∞ telles que :

$$a = -b_{\infty} \frac{\cos b_{\infty} \pm 1}{\sin b_{\infty}} \quad (A - 15)$$

Le faisceau sortant est une onde plane : l'effet de focalisation thermique compense exactement la divergence des faces, en imposant des "waists" dans le barreau (sauf pour la première valeur de b_{∞}). Entre deux valeurs successives de b_{∞} , d décroît de $+\infty$ à $-\infty$, en passant par zéro pour des valeurs b_0 telles que :

$$a = -b_0 \cot g b_0 \quad (A - 16)$$

Ces valeurs nulles de d correspondent à un "waist" localisé sur la face de sortie.

APPENDICE B

Détermination géométrique des zones de stabilité d'une cavité simple

Il existe un moyen très simple pour savoir si une cavité composée de deux miroirs plans ou concaves est stable. Cette méthode est détaillée par Metcalf et al. dans l'appendice de la référence [Metcalf et al, 87]. Le résultat principal est qu'il suffit de tracer pour chacun des deux miroirs de la cavité le cercle passant par le sommet A_i du miroir M_i et son centre C_i (cf. figure B-1). Si ces deux cercles se croisent, la cavité est stable, le "waist" du faisceau gaussien se trouve dans le plan défini par l'intersection des deux cercles et le paramètre confocal z_0 est égal à la distance OH . Le faisceau est alors entièrement déterminé par les relations :

$$w_0^2 = \frac{z_0 \lambda_0}{n \pi} \quad (B-1)$$

$$w(z)^2 = w_0^2 \left[1 + \left(\frac{z}{z_0} \right)^2 \right] \quad (B-2)$$

$$R(z) = z \left[1 + \left(\frac{z_0}{z} \right)^2 \right] \quad (B-3)$$

où λ_0 est la longueur d'onde du rayonnement dans le vide, n est l'indice du milieu, w_0 est la taille du "waist" (centré en 0), $w(z)$ la taille du faisceau à une distance z de 0 et $R(z)$ est le rayon de courbure du front d'onde à la distance z . Si les deux cercles ne se croisent pas, la cavité est instable. Suivant les valeurs des rayons de courbure R_i des miroirs, il existe deux zones de stabilité en fonction de la distance $\overline{A_1 A_2}$ entre les deux miroirs : supposons $|R_2| \geq |R_1|$, alors :

$$\text{si } R_1 \geq 0, \quad \text{on a } 0 \leq \overline{A_1 A_2} \leq R_1 \quad (B-4)$$

$$\text{ou } R_2 \leq \overline{A_1 A_2} \leq R_1 + R_2 \quad (B-5)$$

$$\text{si } R_1 \leq 0, \quad \text{on a } R_1 \leq \overline{A_1 A_2} \leq 0 \quad (B-6)$$

$$\text{ou } R_1 + R_2 \leq \overline{A_1 A_2} \leq R_2 \quad (B-7)$$

R_1 et R_2 sont pris positifs pour un miroir concave.

Cavité contenant deux miroirs plans et une lentille :

Utilisant cette remarque, nous pouvons retrouver qualitativement l'aspect de la figure I-2a. Pour cela, remplaçons le barreau laser par une lentille mince de focale f variable, placée dans une cavité constituée de deux miroirs plans (cf. figure B-2a). La lentille est à une distance fixe ℓ du miroir M_1 et à une distance variable L du miroir M_2 . Le couple miroir M_1 , lentille est optiquement équivalent pour les faisceaux gaussiens (cf. [Metcalf et al, 87]) à un miroir sphérique M'_1 dont le

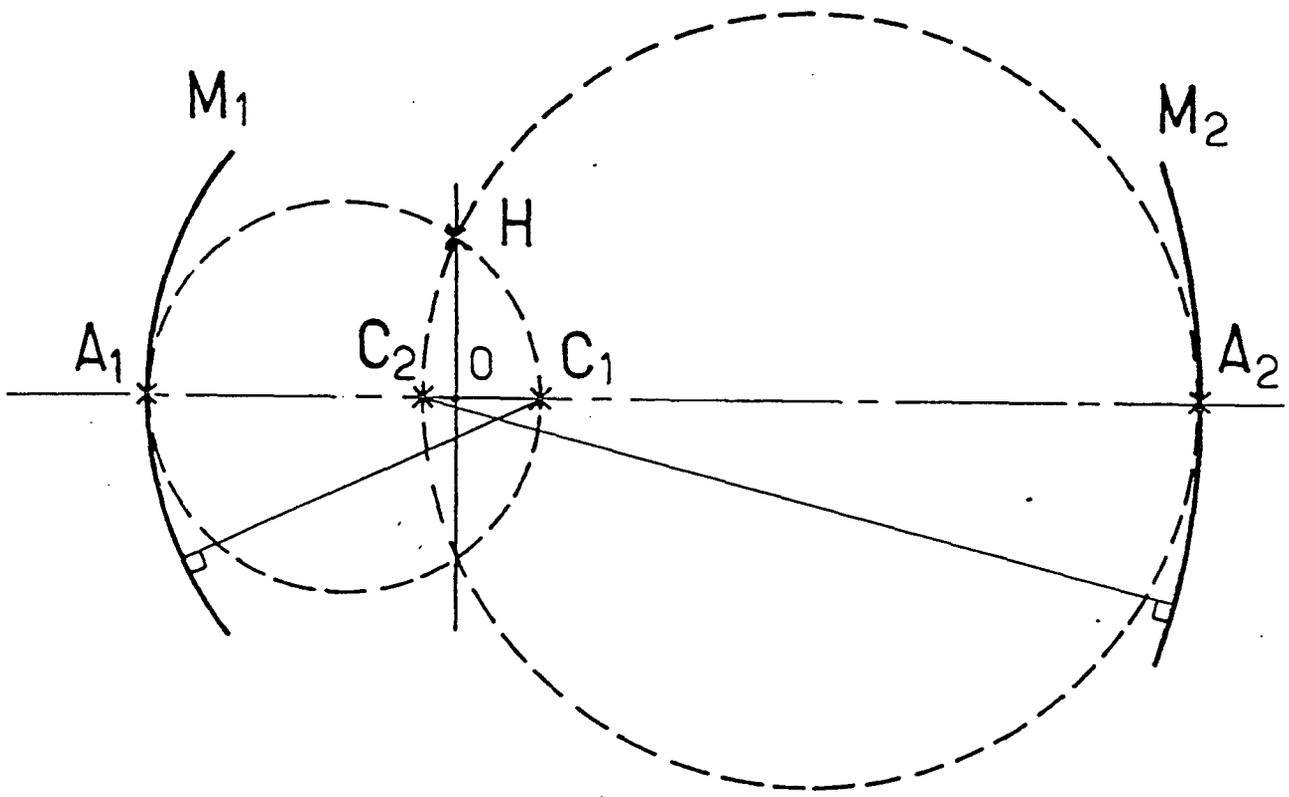


Figure B-1

Cavité composée de deux miroirs sphériques (M_1 et M_2) de sommets A_1 et A_2 et de centre C_1 et C_2 .

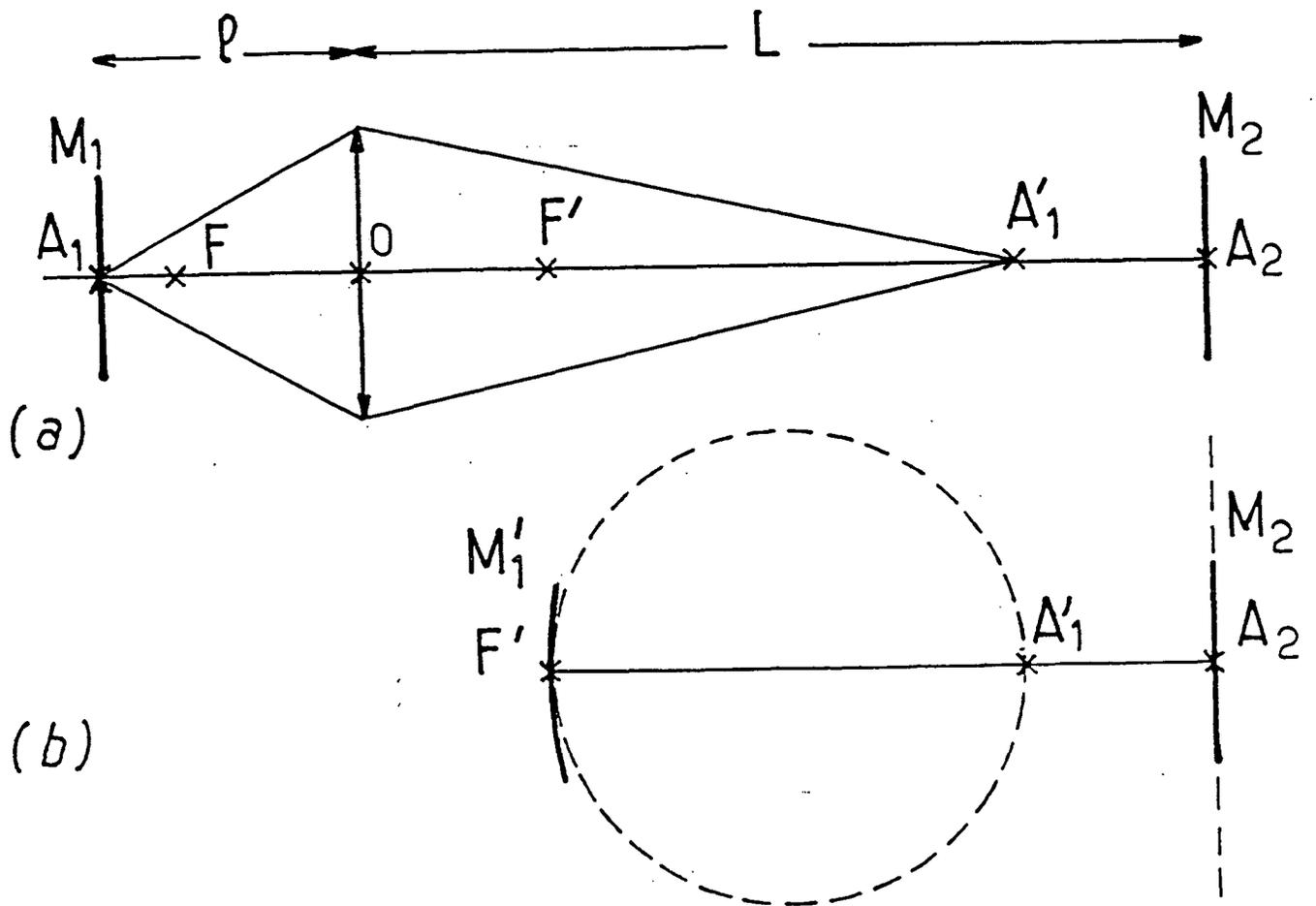


Figure B-2

a : cavité composée de deux miroirs plans (en A_1 et A_2) et d'une lentille (en O) de foyers F et F' . L'image de A_1 par la lentille est A'_1 .

b : cavité équivalente à celle de a avec un miroir M'_1 situé en F' et de rayon $\overline{F'A'_1}$; M_2 est inchangé.

sommet est placé au foyer F' de la lentille et le centre de courbure en A'_1 , point image par la lentille du sommet A_1 du miroir M_1 (cf. figure B-2b). Le rayon du miroir équivalent est donc :

$$R' = \overline{F'A'_1} \quad (B-8)$$

et la distance entre les deux miroirs est $\overline{F'A_2}$. R_2 étant infini dans le cas présent, on déduit des relations B-4 et B-6 deux zones de stabilité possibles pour la cavité suivant le signe de R' :

$$0 \leq \overline{F'A_2} \leq R' \quad (B-9)$$

$$\text{ou} \quad R' \leq \overline{F'A_2} \leq 0 \quad (B-10)$$

Nous avons par ailleurs les relations suivantes :

$$\overline{F0} = \overline{0F'} = f \quad (B-11a)$$

$$\overline{A_1F} \cdot \overline{A'_1F'} = -f^2 \quad (B-11b)$$

$$\overline{A_1F} = \ell - f \quad (B-11c)$$

$$\overline{F'A_2} = L - f \quad (B-11d)$$

D'où

$$R' = \frac{f^2}{\ell - f} \quad (B-12)$$

Pour simuler l'effet de lentille thermique causé par l'échauffement du barreau, faisons varier la distance focale f en fonction d'un paramètre sans dimension P , analogue à l'échauffement (P_e/P_o) :

$$f = \frac{f_0}{P}$$

où f_0 est une constante (en centimètre). Ce choix est naturel car il correspond, dans la limite des échauffements nuls, à la distance focale du barreau qui est, dans ces conditions équivalent à une lentille épaisse. Le diagramme des zones de stabilité peut alors être tracé à l'aide des relations B-9 et B-10. Pour ce faire, faisons varier P de $-0,5$ à 1 et L de -100 à 100cm . Les valeurs négatives de L n'ont aucune signification physique ($L < 0$ correspond à une cavité composée uniquement de deux miroirs plans, la lentille se trouvant à l'extérieur), mais elles sont utiles pour bien visualiser ce qui se passe. Les valeurs négatives de P reviennent à mettre une lentille divergente dans la cavité. Ainsi, pour tenir compte de la divergence due aux faces concaves du barreau, il suffit de faire une translation le long de l'axe des échauffements : $P' = P + P_{\text{div}}$ où P_{div} est une valeur fixe, caractéristique de la divergence des faces ($P_{\text{div}} > 0$) et P' représente alors la vraie échelle d'échauffement ($P' = 0$ correspondant à un échauffement nul). Ce résultat est en accord avec l'interprétation de la figure I-2b.

La figure B-3 présente en traits pleins les limites des deux zones de stabilité de la cavité ((A) et (B)), les zones et courbes en pointillés, sans signification physique ($L < 0$), aidant juste à l'interprétation globale du dessin. La droite $P=0$ correspond au cas où la distance focale de la lentille est infinie. Tout se passe alors comme s'il n'y avait pas de lentille et la cavité est alors simplement composée de deux miroirs plans. Pour $P = \frac{1}{3}$, le miroir M_1 se retrouve au foyer de la

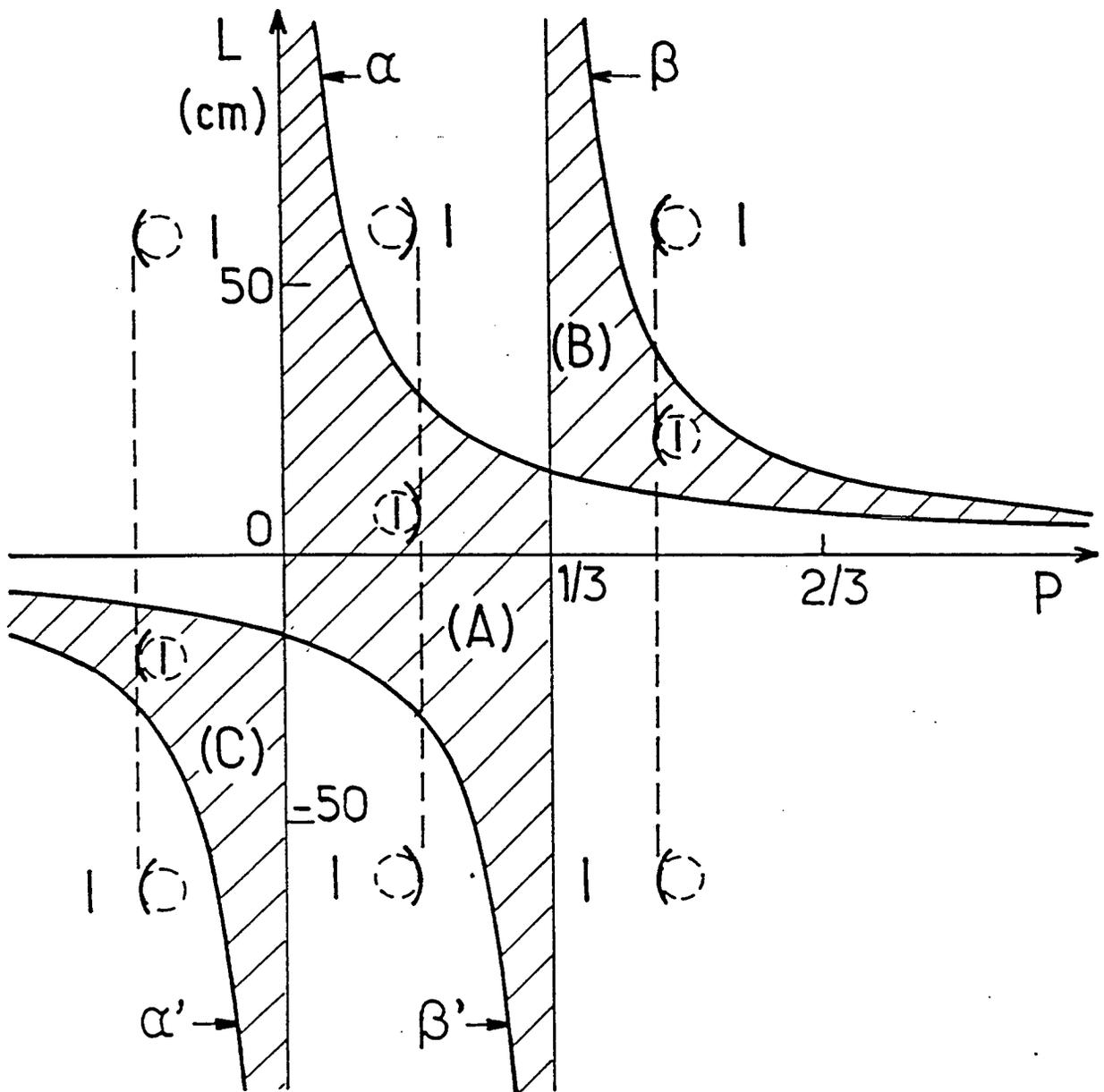


Figure B-3

Zones de stabilités de la cavité présentée figure B-2 en fonction de la longueur L et du paramètre P (cf. texte). α et α' : $L = f = 0F'$; β et β' : $L = f + R' = f + F'A_1'$. On a représenté dans chaque zone la position relative des miroirs M_1' et M_2 ainsi que le sens de la concavité du miroir M_1' .

lentille. Le centre A'_1 du miroir équivalent à M'_1 se trouve ainsi à l'infini : le miroir équivalent est donc plan. Les courbes α, α' (respectivement β, β') correspondent au cas où les deux miroirs sont confondus : $\overline{A_1 A_2} = 0$ (respectivement séparés de R' : $\overline{A_1 A_2} = R'$).

On constate ainsi que les deux zones de stabilité (A) et (B) diffèrent essentiellement par la position relative du miroir équivalent M'_1 par rapport au miroir M_2 : dans la zone (A), M'_1 est à droite de M_2 , alors qu'il est à gauche dans la zone (B). Cela est rendu nécessaire par le changement de courbure du miroir équivalent qui passe continûment d'une courbure négative à une courbure nulle ($R' \rightarrow \infty$, miroir plan pour $P=1/3$), puis à une courbure positive ($P>1/3$). Les zones (A) et (B) sont, au-delà, délimitées par les courbes β et β' correspondant à une distance entre M'_1 et M_2 égale au rayon de courbure du miroir équivalent. Le même raisonnement s'applique également pour la zone (C). La zone (A) correspond à la relation B-10, alors que les zones (B) et (C) correspondent à la relation B-9.

L'allure des courbes de la figure I-2 se retrouve dans le premier quadrant de la figure B-3 ($P > 0, L > 0$), avec éventuellement une translation suivant l'axe des P pour tenir compte des faces divergentes ou convergentes du barreau. Pour les échauffements faibles ($P_a/P_o \ll 1$), Metcalf et al. ont montré que le barreau est équivalent à une lentille épaisse. Aussi, notre description du barreau par une lentille mince est assez grossière, mais est néanmoins suffisante qualitativement pour donner une interprétation des diverses limites des zones de stabilité. Par contre, nous avons dû ajuster le paramètre f_0 pour obtenir les zones de stabilité dans une plage de variation de P similaire à celles de P_a/P_o dans le modèle numérique. Ceci justifie la nécessité d'utiliser le modèle complet : une erreur d'un facteur 2 pour le paramètre f_0 entraîne une erreur d'un facteur 1/2 pour la puissance de pompe. De plus, cette approximation est incapable de rendre compte des effets à fort échauffement (présence de "waits" dans le barreau).

Cavité contenant un miroir plan, une lentille et un miroir sphérique :

Suivant la même procédure, les zones de stabilité d'une cavité où le miroir M_2 est concave sont évaluées aisément et reportées sur la figure B-4 pour un rayon de courbure du miroir M_2 $R_2 = 50cm$. Le point important, en dehors du fait que les deux zones de stabilité sont déformées vers des valeurs d'échauffement P plus faibles comme prévu, est l'apparition d'une nouvelle zone de stabilité (D). En effet, le rayon de courbure du miroir M_2 , devenant fini, fait apparaître une deuxième zone d'intersection possible avec le miroir M'_1 . En fait, cette zone, pour une courbure nulle de M_2 , est rejetée à une valeur de L infinie. C'est cette troisième zone qui apparaît dans la figure I-5.

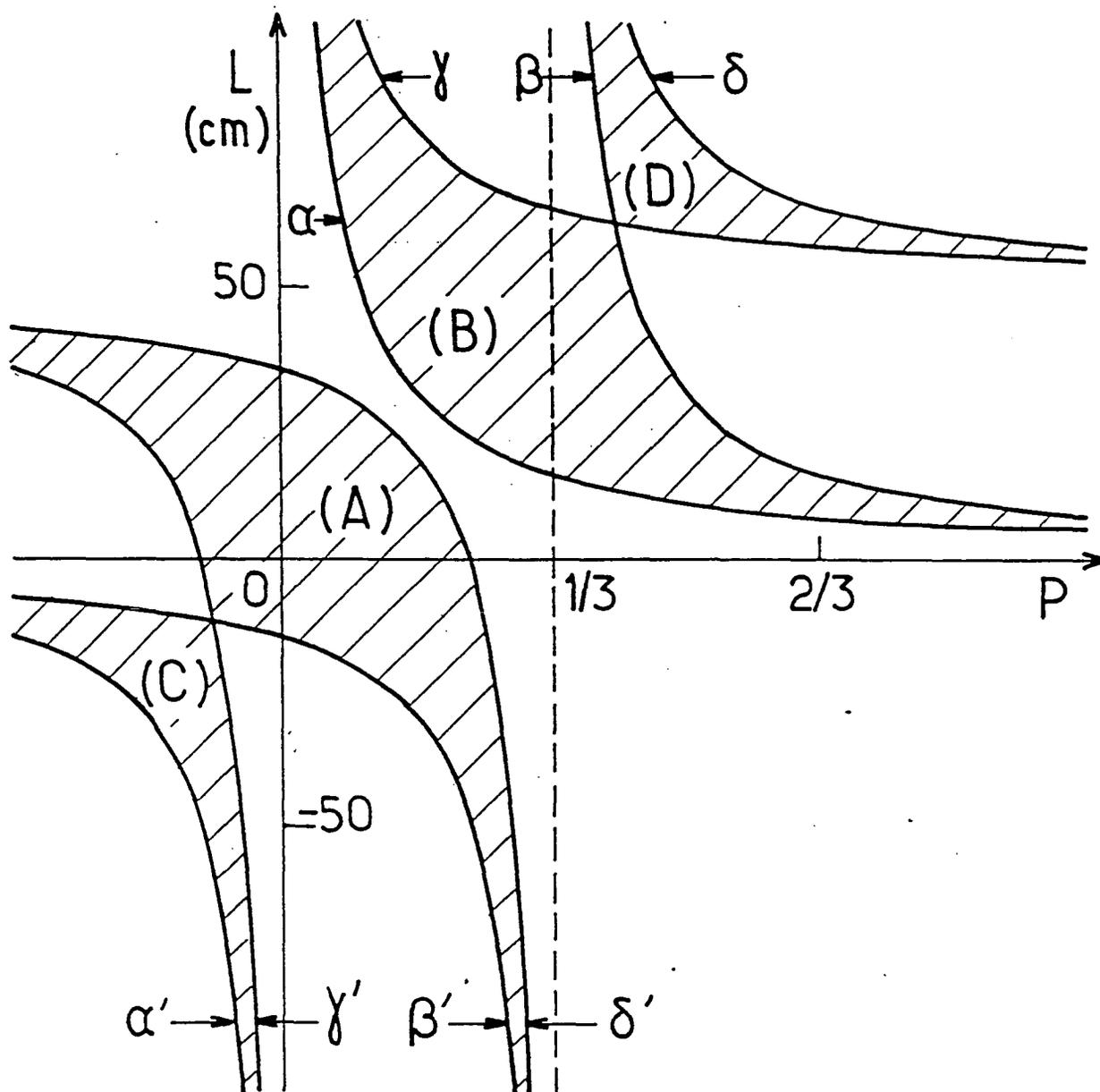


Figure B-4

Zone de stabilité de la cavité présentée figure B-2 mais avec un miroir M_2 concave de rayon R_2 . α et α' : $L = f$; β et β' : $L = f + R'$; γ et γ' : $L = f + R_2$; δ et δ' : $L = f + R' + R_2$.

APPENDICE C

Calcul de la relation entre densité de métastables et absorption du faisceau sonde

Nous rappelons brièvement ici le calcul du taux d'absorption d'un faisceau laser monomode résonnant avec un gaz d'atomes de densité n et appliquons le résultat au cas des atomes métastables d'hélium-3 (transitions C_8 ou C_9) et d'hélium-4 (transition D_0).

L'intensité d'un faisceau lumineux se propageant suivant l'axe Oz dans un milieu absorbant décroît exponentiellement suivant la relation :

$$I(z) = I(z=0) e^{-K \cdot z} \quad (C-1)$$

avec [Cagnac et al,] :

$$K = n \frac{\alpha \hbar}{m} f_t \frac{\Gamma/4\pi}{(\nu - \nu_0)^2 + (\Gamma/4\pi)^2} \quad (C-2)$$

où α : constante de structure fine ; \hbar : constante de Planck ; m : masse de l'électron ; f_t : force d'oscillateur de la transition ; Γ : taux de désexcitation par émission spontanée de l'état excité ; ν : fréquence du laser dans le référentiel du centre de masse de l'atome ; ν_0 : fréquence de résonance de la transition atomique.

Dans le cas d'un laser dont la fréquence dans le référentiel du laboratoire est égale à ν_0 et considérant que la largeur Doppler d'absorption D des atomes est très grande devant Γ , on obtient, après intégration sur toutes les vitesses possibles des atomes :

$$K = n \sqrt{\pi} \frac{\alpha \hbar}{mD} f_t \quad (C-3)$$

d'où l'expression de la densité d'atomes n en fonction du taux d'absorption \mathcal{A} du faisceau laser :

$$n = \frac{1}{\sqrt{\pi}} \left| \frac{mD}{\alpha \hbar L} \right| \frac{1}{f_t} \ell n \frac{1}{1 - \mathcal{A}} \quad (C-4)$$

où L est la distance de propagation du faisceau dans le milieu absorbant.

Dans le cas d'une transition C_k (D_k) de l'hélium-3 (hélium-4), on a :

$$f_t = f_k = f \cdot \sum_{ij\epsilon k} T_{ij} \quad (C-5)$$

où $f = 0,5391$ et les matrices T_{ij} sont données dans le tableau II-2 du chapitre II. Il faut également tenir compte de la structure du niveau métastable de l'hélium qui est composé de trois sous-niveaux pour l'hélium-4 ($m_J = 0, \pm 1$) et de six sous-niveaux pour l'hélium-3 ($F = 1/2$; $m_F = \pm 1/2$ et $F = 3/2$; $m_F = \pm 1/2, \pm 3/2$). Pour un gaz d'hélium non polarisé, les populations de ces sous-niveaux sont égales. La densité de métastable totale est donc la valeur déduite de la formule C-4 multipliée par trois pour l'hélium-4 et par six pour l'hélium-3. On obtient ainsi pour l'hélium-4 :

$$n = \frac{3}{\sqrt{\pi}} \frac{mD}{\alpha \hbar L} \frac{1}{f_k} \ell n \frac{1}{1 - \mathcal{A}} \quad (C-6)$$

et pour l'hélium-3 :

$$n = \frac{6}{\sqrt{\pi}} \frac{mD}{\alpha \hbar L} \frac{1}{f_k} \ell n \frac{1}{1 - \mathcal{A}} \quad (C - 7)$$

Par exemple, pour D_0 :

$$n_{\text{hélium-4}}(\text{cm}^{-3}) = 23,0 \cdot 10^{10} \ell n \frac{1}{1 - \mathcal{A}} \quad (C - 8)$$

pour C_9 :

$$n_{\text{hélium-3}}(\text{cm}^{-3}) = 47,5 \cdot 10^{10} \ell n \frac{1}{1 - \mathcal{A}} \quad (C - 9)$$

et pour C_8 :

$$n_{\text{hélium-3}}(\text{cm}^{-3}) = 60,5 \cdot 10^{10} \ell n \frac{1}{1 - \mathcal{A}} \quad (C - 10)$$

APPENDICE D

Principe du calcul de l'intensité transmise par un ensemble de polariseurs et de lames $\lambda/4$ imparfaits

Nous utilisons le formalisme de la matrice polarisation [Landau et al,], [Born et al, 69]. Soit Oxyz un trièdre direct, la lumière se propageant suivant Oz. La lumière en un point de l'espace est représentée par une matrice 2×2 , l'intensité de la lumière étant égale à la trace de la matrice. Ainsi, la lumière naturelle est décrite par la matrice :

$$\pi_0 = \frac{I}{2} \begin{pmatrix} 1 & 0 \\ 0 & 1 \end{pmatrix} \quad (D - 1)$$

où I est l'intensité lumineuse.

Chaque composant anisotrope (polariseur, lame anisotrope) est représenté par une matrice M . Ainsi, après traversée d'un élément anisotrope (M), la lumière incidente (π_1) deviendra :

$$\pi_t = M \pi_1 M^+ \quad (D - 2)$$

Par exemple, un polariseur d'axe Ox est représenté par la matrice :

$$M_p = \begin{pmatrix} 1 & 0 \\ 0 & 0 \end{pmatrix} \quad (D - 3)$$

Une lame biréfringente non absorbante d'axes parallèles à Ox et Oy :

$$M_L = \begin{pmatrix} e^{i\varphi_1} & 0 \\ 0 & e^{i\varphi_2} \end{pmatrix} \quad (D - 4)$$

avec φ_1 et φ_2 : retard de phase suivant les deux axes.

La matrice M d'un élément optique est modifiée, après rotation d'un angle θ dans le plan Oxy, en une matrice M' :

$$M' = S_\theta^{-1} M S_\theta \quad (D - 5)$$

avec

$$S_\theta = \begin{pmatrix} \cos\theta & \sin\theta \\ -\sin\theta & \cos\theta \end{pmatrix} \quad (D - 6)$$

Nous avons modélisé l'ensemble de calibration de la détection optique (cf § II-4-1) par une série de quatre éléments optiques, avec dans l'ordre :

* un polariseur imparfait P_1 tourné d'un angle α par rapport à Ox :

$$M_{P_1} = \begin{pmatrix} \cos\alpha & -\sin\alpha \\ \sin\alpha & \cos\alpha \end{pmatrix} \begin{pmatrix} 1 & 0 \\ 0 & \varepsilon \end{pmatrix} \begin{pmatrix} \cos\alpha & \sin\alpha \\ -\sin\alpha & \cos\alpha \end{pmatrix} \quad (D - 7)$$

* une lame " $\lambda/4$ " imparfaite L_1 , induisant de fait un retard de phase φ entre les deux polarisations, et tournée d'un angle θ par rapport à P_1 (et donc d'un angle $(\theta + \alpha)$ par rapport à Ox) :

$$M_{L_1} = \begin{pmatrix} \cos(\alpha + \theta) & -\sin(\alpha + \theta) \\ \sin(\alpha + \theta) & \cos(\alpha + \theta) \end{pmatrix} \begin{pmatrix} 1 & 0 \\ 0 & e^{i\varphi} \end{pmatrix} \begin{pmatrix} \cos(\alpha + \theta) & \sin(\alpha + \theta) \\ -\sin(\alpha + \theta) & \cos(\alpha + \theta) \end{pmatrix} \quad (D - 8)$$

(Pour le calcul de l'intensité transmise, seule la différence de retard entre les deux axes principaux de la lame compte).

* une lame " $\lambda/4$ " imparfaite L_2 (retard de phase φ identique à L_1), tournant à une vitesse $\omega = 2\pi \nu$:

$$M_{L_2} = \begin{pmatrix} \cos\omega t & -\sin\omega t \\ \sin\omega t & \cos\omega t \end{pmatrix} \begin{pmatrix} 1 & 0 \\ 0 & e^{i\varphi} \end{pmatrix} \begin{pmatrix} \cos\omega t & \sin\omega t \\ -\sin\omega t & \cos\omega t \end{pmatrix} \quad (D - 9)$$

* un polariseur imparfait P_2 , placé suivant l'axe Ox :

$$M_{P_2} = \begin{pmatrix} 1 & 0 \\ 0 & \varepsilon \end{pmatrix} \quad (D - 10)$$

La lumière incidente est supposée non polarisée (formule D-1). La lumière en sortie est donc donnée par :

$$\pi_s = M_{P_2} M_{L_2} M_{L_1} M_{P_1} \pi_0 M_{P_1}^+ M_{L_1}^+ M_{L_2}^+ M_{P_2}^+ \quad (D - 11)$$

et son intensité I_s est obtenue en prenant la trace de π_s . Nous avons mené les calculs numériquement ⁽¹⁾ pour divers instants t , ce qui nous a permis d'extraire de $I_s(t)$ ses composantes continue et modulées à 2ν et 4ν .

⁽¹⁾ Le calcul littéral complet (21 matrices à multiplier comprenant des expressions trigonométriques pour 4 angles différents) est faisable, mais particulièrement lourd.

REFERENCES BIBLIOGRAPHIQUES

- [Aminoff et al, 89] Aminoff C.G., Larat C., Leduc M., Laloë F., *Revue Phys. Appl.* **24**, 827 (1989).
- [Antonov et al, 88] Antonov V.A., Arsenev P.A., Bagdasarov Kl. S., Makhmudov I.T., *Sov. Phys. Cryst.* **33**, 608 (1988).
- [Aubert et al, 89] Aubert J.J., Wyon C., Cassimi A., Hardy V., Hamel J., *Opt. Commun.* **69**, 299 (1989).
- [Bagdasarov et al, 83] Bagdasarov Kh. S., Dorozhkin L.M., Kevorkov A.M., Krasilov Yu. I., Potemkin A.V., Shestakov A.V., Kuratev I.I., *Sov. J. Quantum Elec.* **13**, 639 (1983).
- [Blumen et al, 86] Blumen A., Klafter J., Zumofen G., *J. Chem. Phys.* **84**, 1397 (1986).
- [Bohler et al, 88] Bohler C.L., Schearer L.D., Leduc M., Nacher P.-J., Zachorowski J., Milner R.G., McKeown R.D., Woodward C.E., *J. Appl. Phys.* **63**, 2497 (1988).
- [Born et al, 69] Born M., Wolf E., "Principles of Optics", Pergamon Press 1969 (p.541).
- [Bouchiat et al, 60] Bouchiat M.-A., Carver T.R., Varnum C.M., *Phys. Rev. Lett.* **5**, 373 (1960).
- [Cagnac et al,] Cagnac B., Pebay-Peyroulat J.C., "Physique Atomique", Ed. Dunod, Paris (19), page
- [Castaing et al, 79] Castaing B., Nozières P., *J. Physique* **40**, 257 (1979).
- [Cohen-Tannoudji et al, 66] Cohen-Tannoudji C., Kastler A., *Progress in Optics* **5**, (North Holland Publ. 1966).
- [Colegrove et al, 60] Colegrove F.D., Franken P.A., *Phys. Rev.* **119**, 680 (1960).
- [Colegrove et al, 63] Colegrove F.D., Schearer L.D., Walters G.K., *Phys. Rev.* **132**, 2561 (1963).
- [Coulter et al., 90] Coulter K.P. et al., *Nuclear Instrument and Methods A288* 463 (1990).
- [Daniels et al, 71] Daniels J.M., Timsit R.S., *Can. J. Phys.* **49**, 525, 539 et 545 (1971).
- [Dexter, 53] Dexter D.L., *J. Chem. Phys.* **21**, 836 (1953).
- [Dupont-Roc et al, 71] Dupont-Roc J., Leduc M., Laloë F., *Phys. Rev. Lett.* **27**, 467 (1971).
- [Dupont-Roc et al, 73] Dupont-Roc J., Leduc M., Laloë F., *J. Physique* **34**, 961 et 977 (1973).
- [Förster, 48] Förster T., *Ann. Physik* **2**, 55 (1948).
- [Gintoft et al, 88] Gintoft R.I., Zabaznov A.M., Paltarak N.M., Shkadarevitch A.P., *J. Appl. Spectr.* **48**, 154 (1988).
- [Hamel et al, 87] Hamel J, Cassimi A., Abu Safia H. Leduc M. Schearer L.D., *Opt. Comm.* **63**, 114 (1987).
- [Happer, 72] Happer W., *Rev. Mod. Phys.* **44**, 169 (1972).
- [Inokuti et al, 65] Inokuti M., Hirayama F., *J. Chem. Phys.* **43**, 1978 (1965).
- [Kaminskii, 81] Kaminskii A.A., "Laser Crystals", Springer-Verlag, Berlin, Heidelberg, New York, 1981.
- [Khan et al, 81] Kahn A., Lejus A.M., Masdac M., Thery J., Vivien D., Bernier J.C., *J. Appl. Phys.* **52**, 6864 (1981).
- [Koechner, 70] Koechner W., *Appl. Opt.* **9**, 1429 (1970).
- [Kogelnick et al, 66] Kogelnick H., Li T., *Proc. IEEE* **54**, 1312 (1966).
- [Landau et al,] Landau L., Lifchitz E., "Théorie du champ", Ed. de La Paix, Moscou (p.162) ;

- [Larat et al, 90] Larat C., Leduc M., Nacher P.-J., Tastevin G., Vermeulen G., *J. Low Temp. Phys.* **80**, 299 (1990).
- [Leduc, 90] Leduc M., *Colloque de Physique* **51**, C6-317 (1990).
- [Leroux, 91] Essai effectué par M. Leroux dans les locaux de la société Microcontrol.
- [Lundt et al, 90] Lundt H., Weidner H., *Optics Comm.* **75**, 430 (1990).
- [Metcalf et al, 87] Metcalf D., De Giovanni P., Zachorowski J., Leduc M., *Appl. Opt.* **26**, 4508 (1987).
- [Mollenauer, 80] Mollenauer L.F., *Opt. Lett.* **5**, 188 (1980).
- [Nacher et al, 82] Nacher P.-J., Leduc M., Trenec G., Laloë F., *J. Phys. Lett.* **43**, L-525 (1982).
- [Nacher et al, 85] Nacher P.-J., Leduc M., *J. Physique* **46**, 2057 (1985) ;
Nacher P.-J., Thèse d'Etat, Paris (1985).
- [Partridge et al, 66] Partridge R.B., Series G.W., *Proc. Phys. Soc.* **88**, 983 (1966).
- [Pavlovic et al, 70] Pavlovic M., Laloë F., *J. Physique* **31**, 173 (1970).
- [Payne et al, 86] Payne S.A., Chase L.L., *J. Opt. Soc. Am.* **B3**, 1181 (1986).
- [Pinard, 73] Pinard M., Thèse de 3ème cycle, Paris (1973) ;
Pinard M., Van der Linde J., *Can. J. Phys.* **52**, 1615 (1974).
- [Pruss et al, 82] Pruss D., Huber G., Beimowski A., Laptev V.V., Scherbakov I.A., Zharikov Y.V., *Appl. Phys.* **B28**, 355 (1982).
- [Rem1] voir [Dexter, 53], [Rotman et al, 88] et les références citées.
- [Rotman et al, 88] Rotman S.R., Hartmann F.X., *Chem. Phys. Lett.* **152**, 311 (1988).
- [Schearer, 85] Schearer L.D. *Ann. Phys. Fr.* **10** 845 (1985).
- [Schearer et al, 86] Schearer L.D., Leduc M., Vivien D., Lejus A.M., Thery J., *IEEE J. Quantum Electron.* **QE-22**, 713 (1986).
- [Schearer et al, 87] Schearer L.D., Leduc M., Zachorowski J., *IEEE J. Quantum Electron.* **QE23**, 1996 (1987).
- [Scherbakov, 90] Scherbakov I.A., *IEEE Quantum Electron.* **QE-24**, 979 (1988).
- [Stringari, 89] Conférence "Spin Polarized Quantum Systems", 20-24 Juin 88, Turin ;
Editeur ; Stringari S et ISI, World Scientific Publishing Co. Pte. Ltd., Singapour 1989.
- [Tastevin, 87] Tastevin G., thèse de Doctorat de l'Université Paris VI, Paris, 1987 ;
Tastevin G., Nacher P.-J., Wiesenfeld L., Leduc M., Laloë F., *J. Phys. France* **49**, 1 (1988).
- [Timsit et al, 71] Timsit R.S., Daniels J.M., *Can. J. Phys.* **49**, 545 (1971).
- [Trenec et al, 82] Trenec G., Nacher P.-J., Leduc M., *Opt. Commun.* **43**, 37 (1982).
- [Verdeyen, 81] Voir entre autres Verdeyen J.T., *Laser Electronics* (Prentice hall, Englewood Cliffs, N.J., 1981).
- [Viana et al, 90] Viana B., Garapon C., Lejus A.-M., Vivier D., *J. Lumin.* **47**, 73 (1990).
- [Vivien et al, 84] Vivien D., Lejus A.M., Thery J., Collongues R., Aubert J.J., Montcorge R., Auzel F., *C.R. Acad. Sci. Paris* **298**, 195 (1984).
- [Vivien, 91] Vivien D., Communication privée.
- [Wiese et al, 66] Wiese W.L., Smith M.W., Glennon B.M., *Atomic transition probabilities*, National Standard Reference Data Series NBS 4 (1966).
- [Woodward, 90] Woodward C.E. et al., *Phys. Rev. Lett.* **65**, 698 (1990).