

ORSAY

n° d'ordre:

UNIVERSITE DE PARIS-SUD  
CENTRE D'ORSAY

THESE

présentée  
pour obtenir

Le TITRE de DOCTEUR EN SCIENCE

PAR

Philippe PERSUY

---

—X—

SUJET: DETECTION PAR MULTIPHOTOIONISATION RESONNANTE DE  
L'HYDROGENE ATOMIQUE ET MOLECULAIRE EN POST DECHARGE .  
DETERMINATION DES DENSITES ATOMIQUES ABSOLUES.

soutenue le 27 juin 1990 devant la Commission d'examen

MM. J.L. DELCROIX Président  
D. DEGOUT  
G. SULTAN  
P. AGOSTINI  
J.P. TARAN



Haec immatura e me iam frustra leguntur o y

à mes parents  
à ma femme  
et à l'horrible monstre  
qui va bientôt  
m'empêcher de dormir



## REMERCEMENT

Ce travail a été réalisé au Laboratoire de Physique des Gaz et des Plasmas d'Orsay et à L'Etablissement Technique Central de l'armement à Arcueil,

je tiens donc à remercier Monsieur Ricard, directeur du L.P.G.P., Monsieur TIXIER, directeur scientifique de l'ETCA, L'I.C.A. MARCEL, directeur du CREA, ainsi que Monsieur CANTAREL, chef du département Physique des Surfaces, de m'avoir accueilli dans leurs laboratoires.

je remercie Monsieur SULTAN d'avoir accepté le travail considérable d'être Directeur de Thèse,

Monsieur le Professeur J.L. DELCROIX, a bien voulu me faire l'honneur de présider mon jury,

Messieurs AGOSTINI et TARAN se sont donné la peine d'être rapporteurs,

M DEGOUT a accepté de juger ce travail qui, sans lui, n'aurait pas été ce qu'il est,

qu'ils en soient tous vivement remerciés.

Messieurs BARAVIAN et JOLLY trouveront ici toute ma gratitude pour leur compétence, leur disponibilité et leur humour, sans eux ce travail n'aurait pas été.

Qu'enfin, l'ensemble des personnes du L.P.G.P. et du CREA avec qui j'ai été en rapport trouve ici toute ma reconnaissance pour la sympathie qu'ils m'ont témoignée, avec une mention

spéciale pour Messieurs FERDINAND et HOSDEZ (sans qui ce travail eût pris moins de temps).

Merci aussi à ma femme d'avoir supporté mes silences hagards (entre autres) pendant la phase de rédaction de ce mémoire.

## TABLE DES MATIERES

### INTRODUCTION

### RAPPELS BIBLIOGRAPHIQUES

#### I] Généralités

- i) introduction
- ii) historique
- iii) hydrogène

#### II] Théorie

- i) introduction
- ii) sections efficaces
- iii) shifts, cohérence, etc

#### III] Hydrogène, dépôts et diagnostics

#### IV] Conclusion

### REFERENCES

### PARTIE EXPERIMENTALE

#### I) PRINCIPE DE L'EXPERIENCE

#### II) DISPOSITIF EXPERIMENTAL

- a) décharge et enceinte
- b) détection et mesure
- c) laser

### III) EXPERIENCES A 3077 Å

A] résultats

B] discussion

- i) niveaux de départ
- ii) règles de sélection
- iii) niveaux d'arrivée
- iv) température rotationnelle
- v) conclusion

### IV) EXPERIENCES A 3647 Å

- i) détection de l'atome
- ii) variations du signal avec la puissance laser
- iii) variations avec la longueur focale
  - a) normalisation
  - b) interprétation
  - c) autre normalisation
- iv) conclusion

## PARTIE THEORIQUE

### I) MODELE THEORIQUE

- a) caustiques
- b) faisceau laser
- c) isophotes
- d) volume élémentaire d'interaction
- f) équations cinétiques
- g) paramètres
- h) fonction de corrélation des photons

### II) CALCUL DU NOMBRE D'IONS CREEES PAR LE LASER

- a) nombre de charges collectées
- b) nombre de charges créées



III)EVOLUTION DU NOMBRE DE CHARGES EN FONCTION DU FLUX

IV)VARIATION DU NOMBRE DE CHARGES EN FONCTION DE LA LONGUEUR  
FOCALE

V)CONCLUSION

- i)rappel des résultats
- ii)discussion

## ETUDE DE LA DENSITE

VI)VARIATION DE LA DENSITE EN FONCTION DU COURANT ET DE LA  
PRESSION

- i)résultats
- ii)discussion

## PROGRAMME

VII)PROGRAMME DE CALCUL DU NOMBRE D' IONS

- i)programme de calcul du nombre d'ions créés par le laser
- ii)exemples de courbes

## CONCLUSION

## REFERENCES BIBLIOGRAPHIQUES



## INTRODUCTION



## INTRODUCTION

Dans le cadre des très nombreuses études menées sur les dispositifs de dépôts physiques en phase vapeur et sur les phénomènes conduisant à ces derniers, les recherches entreprises et les diagnostics utilisés sont variés tout autant que les milieux et dispositifs étudiés. La grande majorité des différents systèmes ont cependant deux caractéristiques en commun :

-le besoin de diagnostics résolus spatialement, associés à la mesure de densités absolues,

-la présence dans ces milieux d'hydrogène, atomique et moléculaire, soit à l'état de traces soit comme un des constituants majoritaires du milieu gazeux.

L'essentiel de ce travail consiste en la mise au point d'un diagnostic laser basé sur le phénomène de multiphotoionisation résonnante et en une tentative pour en déduire des valeurs de concentration absolue d'hydrogène atomique.

L'utilisation et la mise au point de tels diagnostics "laser" est en pleine évolution et leur application à des dispositifs de dépôt devrait aider à répondre à quelques unes des nombreuses questions que pose la complexité des phénomènes conduisant à la formation des dépôts.

Dans la première partie de ce mémoire sont donnés quelques rappels bibliographiques montrant la diversité des phénomènes multiphotoniques, indiquant quelques étapes de leur évolution (expérimentale et théorique) et illustrant le rôle particulier de l'hydrogène .

La partie expérimentale décrit deux séries d'expériences effectuées à 307,7 et 364,7 nm, portant respectivement sur la détection en post-décharge de l'hydrogène moléculaire et de l'hydrogène atomique.

La partie théorique présente un modèle précisant le "volume d'interaction" et rendant compte des résultats expérimentaux des

expériences de multiphotoionisation de l'atome.

Ce modèle, dont l'un des résultats est une estimation de la section efficace d'excitation à trois photons de l'atome d'hydrogène (à 364,7 nm) est ensuite utilisé pour déterminer la densité absolue d'atomes dans l'état fondamental pour différentes conditions de la décharge.

Enfin le programme de calcul et quelques exemples de courbes montrant l'évolution du nombre d'ions et d'états excités à l'intérieur du volume d'interaction sont présentés.

RAPPELS

BIBLIOGRAPHIQUES





## I] Généralités

### i) Introduction

Une particule irradiée peut être ionisée quand l'énergie du photon par lequel elle est éclairée est supérieure ou égale à l'énergie d'ionisation de la particule. C'est le processus bien connu de photoionisation. Cependant une particule avec un potentiel d'ionisation  $E_i$  peut être ionisée par des photons d'énergie  $h\nu$  bien inférieure à  $E_i$  si le flux de photons est suffisamment important. Ceci peut être obtenu en pratique uniquement par un rayonnement laser (dans le domaine optique).

Une revue des processus multiphotoniques a été donnée dans la littérature [B0]; s'agissant d'ionisation, trois types de phénomènes retiennent particulièrement l'attention: suivant que l'ionisation met en jeu des niveaux virtuels inférieurs à  $E_i$ , des niveaux réels ou des états situés dans le continuum, on parle respectivement d'ionisation multiphotonique (MPI), d'ionisation multiphotonique résonnante (REMPI pour resonance-enhanced MPI) ou de "above threshold ionization" (ATI) dans laquelle l'électron produit par l'ionisation emporte l'énergie d'un ou plusieurs photons supplémentaires.

Il semble bien établi que c'est l'ionisation multiphotonique qui est responsable de la création des premières particules chargées lorsqu'un gaz dense est ionisé par l'action d'un laser focalisé. A basse pression ( $10^{-3}$  Torr), quand le libre parcours moyen d'un électron [B1] est plus grand que le volume focal, la MPI est le seul processus possible, et le laser peut être considéré comme interagissant avec un atome indépendant. A des pressions plus élevées ( $>10^{-1}$  Torr), c'est le processus d'ionisation par avalanche électronique qui devient dominant, les électrons germes étant créés par MPI.

L'ionisation dite multiphotonique résulte de l'absorption simultanée d'un nombre  $N$  de photons,  $N$  étant un entier (en général

le premier ) supérieur à  $\frac{E_i}{h\nu}$ . Une des particularités essentielles des processus multiphotoniques est qu'ils se produisent par l'intermédiaire de niveaux dits virtuels, c'est à dire d'états non stationnaires qui ne retiennent pas d'énergie. Il est cependant possible de supposer qu'une particule puisse rester un certain temps  $\tau$  dans un état virtuel, ce temps est déterminé par le principe d'incertitude, il est typiquement de l'ordre de  $10^{-15}$  s. Par conséquent l'absorption de photons via des états virtuels doit intervenir dans des temps inférieurs à  $10^{-15}$  s. C'est à dire que le flux de photons doit être tel qu'un nombre important de photons atteigne la particule dans un temps de  $10^{-15}$  s. C'est pourquoi un rayonnement laser est nécessaire pour que des processus multiphotoniques puissent être observés.

De façon plus réaliste, il faut tenir compte des niveaux réels de la particule. Quand la fréquence du laser varie, la probabilité d'ionisation,  $W$ , présente un caractère de résonance quand l'énergie d'un nombre entier de photons coïncide avec l'énergie d'un niveau réel, i.e.  $\Delta E=0$ , où  $\Delta E$  est l'écart d'énergie entre le niveau réel et l'état virtuel. Cependant la valeur de  $W$  reste finie car il faut aussi considérer le couplage de l'état résonnant avec l'état fondamental et le continuum.

Quand un état virtuel est proche d'un état de la particule, le temps  $\tau$  est déterminé par  $1/\Delta E$ , i.e.:  $\tau = 10^{-12}$  s pour  $\Delta E = 30 \text{ cm}^{-1}$ . Cela signifie que, en dépit de l'écart  $\Delta E$ , la particule se trouve dans l'état réel pendant un temps  $(\Delta E)^{-1}$  [B2]. Il apparaît alors un décalage statique en longueur d'onde de la raie de résonance.

La probabilité d'ionisation par absorption de  $N$  photons est donnée par  $W = \sigma_N I^N$ , où  $I$  est l'intensité laser et  $\sigma_N$  la section efficace généralisée de photoionisation à  $N$  photons.  $W$  met en relief les caractéristiques du laser: fréquence, cohérence et polarisation.

## ii) Historique

Les premiers phénomènes multiphotoniques ont été observés expérimentalement dans le domaine des radiofréquences, il s'agissait de transitions entre sous niveaux Zeeman [B3] (1956). Les expériences portant sur des phénomènes multiphotoniques dans le domaine optique ont succédé à l'invention du laser. Les premiers lasers n'étaient accordables que sur des intervalles de fréquence étroits, pour cette raison la plupart des expériences ont porté sur des transitions optiques à plusieurs quanta aboutissant à un continuum d'états (ionisation d'un gaz monoatomique, transitions entre bandes d'un solide ou d'une grosse molécule) [B4].

S'agissant de transitions multiphotoniques entre niveaux liés d'un atome (obtenues de prime abord en déplaçant légèrement la longueur d'onde d'un laser solide), les premières expériences ont été le fait de Delone et ses collaborateurs à l'Institut Lebedev [B5], du groupe de Saclay [B6] et du groupe d'Orsay [B7].

Le développement plus récent des lasers à colorant accordables en longueur d'onde a donné, donne et donnera lieu à une multitude d'expériences.

Les expériences menées sur les processus multiphotoniques sont très variées, aussi bien quant au nombre de photons mis en jeu, que quant aux particules considérées, aux procédures expérimentales ou encore aux phénomènes physiques. Cette richesse est directement liée au développement de lasers de types et de performances variés. Sans pouvoir être exhaustifs nous donnerons quelques exemples illustrant cette variété.

Le plus petit nombre de photons invoqué est évidemment deux, mais déjà la variété des expériences est grande : excitation de niveaux atomiques (ou moléculaires [B8]) (donnant lieu à une fluorescence induite) par absorption de deux photons de longueurs d'onde différentes [B9], ou de longueurs d'onde identiques [B10]; ionisation à deux photons [B2], excitation à deux photons suivie

d'une ionisation par absorption d'un photon supplémentaire, etc.

Le nombre de photons invoqués dans la réalisation d'une expérience n'est limité que par la puissance laser disponible, puisque plus le nombre de photons nécessaire est grand, plus la puissance laser doit être importante; cette limite n'est donc pas une limite physique mais une limite pratique. La diversité des particules cibles et donc des niveaux résonnants possibles augmente encore les possibilités. C'est ainsi que des expériences ont été réalisées où le nombre de photons est très varié :

-REMPI à trois + un photons du Césium [B2]

-MPI à onze photons du Xenon [B11]

-REMPI à neuf + cinq photons de l'azote moléculaire; dissociation multiphotonique résonnante de  $N_2$  (à huit + trois photons) suivie de MPI à onze et treize photons de N [B12]

- REMPI et (R)ATI à  $3\omega_1 + \omega_2$ ,  $2\omega_1 + 5\omega_2$ ,  $3\omega_1 + 2\omega_2$ ,  $3\omega_1 + 3\omega_2$  de l'hydrogène atomique, où  $\omega_1$  et  $\omega_2$  représentent deux lasers de fréquences différentes [B13]

-REMPI à deux + un photons du radical méthyl [B14 a)] et MPI du benzène [B14 b)]

-REMPI à sept ( huit) + quatre (cinq) photons du monoxyde de carbone [B15]

-REMPI de l'hélium à (18+3) et (9+2), du néon à (14+5) et (7+3), de l'argon à (10+4) et (6+1), du krypton à (9+3) et (5+1) et du xénon à (9+2) et (4+2) photons [B6 b)]

-des expériences de fluorescence induite à deux photons ont aussi été menées sur le chlore [B16], l'oxygène [B17] ou le soufre [B18].

-etc

Notons enfin que la première observation de l'ATI a été effectuée par le groupe de Saclay [B6 c)] dans une expérience de MPI à six photons sur le Xénon.

### iii) Hydrogène

L'hydrogène atomique a ceci de particulier qu'il est en même temps l'atome le plus simple, sur lequel les calculs vont donc pouvoir être le plus "simplement" effectués, et l'atome sur lequel les expériences sont les plus délicates à mettre en oeuvre. Là encore le développement des lasers a conditionné la réalisation des expériences; en effet il a fallu attendre l'apparition de sources accordables dans la région de l'ultraviolet lointain pour que des expériences soient effectuées sur des éléments dont les longueurs d'ondes de résonance se situent dans cette région, en particulier l'hydrogène atomique. Les expériences sur l'hydrogène atomique sont en tout état de cause encore rares.

La première expérience portant sur l'hydrogène atomique est à notre connaissance, le fait de T.W.Hänsch et al [B10] en 1975. Ces auteurs ont observé l'excitation à deux photons du niveau fondamental vers le niveau métastable (2s) de l'atome. Une autre expérience à deux photons a été menée en 1981 par J.Bokor et al, il s'agissait cette fois de la première observation de l'excitation du niveau  $n=3$  [B9].

Des expériences de REMPI à (3+1) photons sont ensuite rapportées par Tjossem [B19 a)], Kelleher [B19 b)] et Baravian [B19 c)].

Citons aussi les travaux de Goldsmith sur la détection multiphotonique de H dans les flammes [B20].

Enfin, la première étude du phénomène d'ATI dans l'hydrogène a été effectuée par Muller et al [B13] en 1986.

## II] THEORIE

### i) Introduction

S'agissant des études théoriques, la situation est pratiquement inverse, c'est à dire que de très nombreux travaux ont été entrepris sur l'atome d'hydrogène, eu égard à sa grande "simplicité".

Les principaux points discutés sont les sections efficaces

(d'ionisation essentiellement), le décalage en longueur d'onde sous l'effet du champ laser, l'élargissement des raies de résonance et la pente des courbes  $\delta \ln(N_i)/\delta \ln I$  (où  $I$  est l'intensité laser et  $N_i$  le nombre d'ions produits). Dans nombre de ces calculs interviennent les propriétés statistiques du laser (nature multimode et cohérence des photons).

Deux principales approches théoriques sont utilisées pour l'analyse de la MPI d'un atome: un traitement semi-classique (Keldysh) et un traitement quantique basé sur l'approximation des perturbations dépendant du temps.

Si de nombreux calculs ont été effectués sur les processus de MPI non résonnante, peu existent sur la REMPI, les calculs traitant du cas non résonnant sont inappropriés au cas résonnant car ils conduisent à des divergences [B 40].

#### ii) Sections efficaces

Les calculs de sections efficaces invoquent :

-a) une sommation directe sur un jeu de valeurs propres couvrant l'ensemble du spectre [B21]

-b) l'évaluation de ces sommations par la méthode implicite de Schwartz et Tieman [B22], nécessitant une intégration numérique d'équations différentielles [B23]

ou c) l'utilisation de la fonction de Coulomb Green nécessitant l'évaluation de fonctions spéciales [B24].

Ces calculs ne sont donc pas triviaux.

Un calcul approximatif sur la MPI de H a été présenté par Bebb et Gold [B25] qui ont étendu leur modèle hydrogèneïde aux atomes alcalins et de gaz rares. Le problème de la sommation sur un jeu infini d'états intermédiaires a été résolu par Zernik et Klopfenstein [B23 b)] en utilisant une technique proposée premièrement par Dalgarno et Lewis [B26]. Chang et Tang [B23 d)] ont appliqué la méthode à l'ionisation à deux photons de l'atome d'hydrogène. Gontier et Trahin [B23 c)] l'ont étendue au cas de l'absorption de plusieurs photons, conduisant à l'excitation et à l'ionisation de H accompagnée d'émission Raman. La technique de

conversion de sommations infinies pour résoudre un jeu d'équations inhomogènes du premier ordre est cependant très dépendante de la forme exacte des fonctions d'ondes initiale et finale, elle ne peut donc être appliquée précisément à d'autres atomes que l'hydrogène.

Haque et Mupha [B27] ont étendu la méthode de Bebb et Gold et obtiennent des résultats en bon accord avec les précédents pour l'ionisation de H à deux photons.

Keldysh a été le premier à tenter de combler le fossé entre le régime des hautes fréquences conduisant à la MPI et le régime de champs quasi-statiques conduisant à l'effet tunnel [B28] en 1965. Ces travaux ont été poursuivis par Shakeshaft et Potvliege [B29] qui prennent en compte l'interaction coulombienne dans l'état final et le champ dans l'état initial.

Les processus multiphotoniques sous des champs intenses ont été passés en revue par Manakov et al [B30] et par Chu [B31] qui fait en particulier une revue des méthodes dites de Floquet de calcul des éléments de matrice en MPI.

Les méthodes de calculs des sections efficaces et des probabilités d'ionisation sont, on le voit, très variées et encore l'objet de nombreux travaux. Citons encore, par exemple les travaux de Potvliege [B32], qui calcule des probabilités d'ionisation partielles (différentielles) de l'atome d'hydrogène dans le formalisme de Floquet et les travaux de Federov qui essaient d'établir des connections entre MPE (E pour excitation), MPI, et ATI [B33 a)], et enfin les travaux de Tang et Shakeshaft [B33 b)] qui présentent des résultats basés sur une approche "unifiée", en écrivant l'équation intégrale pour un électron lié par un potentiel dans un champ laser monochromatique et homogène spatialement.

iii) "Shifts", Cohérence, etc

En supposant un rayonnement cohérent, les raies de résonance en MPI sont décalées en longueur d'onde par effet Stark (quadratique), ces effets sont une conséquence du couplage entre les états résonnants et les niveaux atomiques non-résonnants [B0]. Ils sont bien décrits par le formalisme de l'atome "habillé" [B34]. Les calculs qui ont été menés sont en bon accord avec l'expérience [B35], pourvu que les paramètres expérimentaux soient bien pris en compte.

Pour des transitions liées-liées d'ordre élevé ( $N=3,4,\dots$  photons), cet effet Stark est proportionnel à l'intensité laser, le décalage en longueur d'onde est typiquement de l'ordre de quelques  $\text{cm}^{-1}/(\text{GW cm}^{-2})$  [B2].

Si l'on considère un petit décalage statique de la raie de résonance  $\Delta E$ , et l'effet Stark sur le niveau de résonance, le décalage en longueur d'onde de la raie devient  $\delta E = \Delta E + \alpha I$ , qui peut donc déplacer la raie de résonance d'un côté ou de l'autre, suivant le signe de  $\Delta E$ ; ceci a aussi un effet sur le facteur  $\delta \ln(N_i) / \delta \ln I = K$ , qui peut être complètement différent du nombre de photons absorbés [B2]. Pour des valeurs de  $\Delta E$  supérieures à  $10 \text{ cm}^{-1}$ , le "shift" du niveau atomique devient insignifiant comparé à  $\Delta E$ , on retrouve alors une variation en  $I^{(\text{nombre de photons absorbés})}$  du nombre d'ions produits.

La plupart des expériences étant conduites avec des lasers pulsés qui montrent de fortes fluctuations temporelles d'intensité, il apparaît un aspect nouveau de corrélations des photons. En particulier la raie n'est plus décalée par le "Stark shift" moyen du niveau atomique mais ce décalage devient dépendant de la statistique des fluctuations d'intensités et de la largeur de bande du laser, ainsi que de paramètres intrinsèques au processus considéré [B36,37].

Lompré et al [B38] ont étudié en détail les effets du nombre de modes du laser sur la REMPI à (3+1) photons de l'atome de Césium,



dans une expérience où une variation du nombre de modes change les propriétés du rayonnement qui passe d'une lumière quasi cohérente à une lumière chaotique (voir aussi [B10]). L'accroissement du nombre de modes conduit à des variations d'intensités et une largeur de bande plus grandes, les raies de résonance sont élargies, décalées et de maximum plus haut comparativement au cas monomode à même intensité moyenne. Le décalage est environ trois fois plus grand dans le cas multimode. A basse intensité, l'élargissement est gouverné par la largeur de bande du laser, tandis qu'à haute intensité, il varie linéairement avec  $I$ . Le maximum de la raie de résonance varie inversement à la largeur de bande du laser pour les grandes valeurs de ces dernières. Cette expérience a été étudiée d'un point de vue théorique par Zoller [B36].

Les effets de cohérence temporelle du laser se font sentir lorsque des lasers pulsés incohérents sont utilisés; ces effets augmentent l'intensité laser instantanée et par conséquent  $W$ . Ceci est fortement lié à la nature non linéaire des phénomènes multiphotoniques. Le temps d'ionisation (typiquement  $10^{-13}$  s pour  $\Delta E = 300 \text{ cm}^{-1}$ ) est plus court que le temps de cohérence, défini comme le temps caractéristique des fluctuations d'intensité laser les plus rapides. Dans ces conditions la particule peut être considérée comme un détecteur très rapide et sensible des propriétés statistiques de l'impulsion laser. La particule n'est pas sensible seulement au flux moyen de photons, mais aussi à la façon dont ces photons arrivent pendant la durée du processus multiphotonique, à savoir s'ils arrivent plus ou moins groupés, ce qui est dépendant de la nature cohérente du rayonnement. La probabilité d'ionisation peut alors s'écrire:  $W = \sigma_N \bar{I}^N$ , où  $f_N$  est la fonction d'autocorrélation d'ordre  $N$  (ou fonction de corrélation des photons).  $f_N$  est égale à l'unité pour un laser monomode et égale à  $N!$  pour un laser multimode (dont les propriétés statistiques sont reliées à celles de la lumière thermique. L'intervention dans cette expression de la fonction de

corrélation des photons a fait l'objet de nombreux travaux théoriques [B39, B10]. Certains auteurs considèrent que le rayonnement doit être considéré comme incohérent, et donc le facteur  $N!$  pris en compte, si le nombre de modes du laser est supérieur à l'ordre d'interaction (Agostini et al [B6]).

Dixit et Lambropoulos [B37 c)] ont même montré que dans le cas d'une résonance avec des niveaux liés intermédiaires, ce facteur pouvait être supérieur à  $N!$ , mais dépendait dans ce cas des détails du processus et de l'intensité laser.

### III] Hydrogène, dépôts et diagnostics.

Les mesures de densité d'hydrogène atomique intéressent nombre de domaines, tels que par exemple la chimie, les recherches en fusion thermonucléaire ou encore les dépôts.

L'hydrogène est présent au moins comme impureté dans la majorité des systèmes de dépôt, quel que soit le procédé utilisé. Son influence n'est pas clairement comprise, mais pour les procédés donnant lieu à décomposition de la molécule, en particulier les procédés plasmas, il semble clair que l'atome dans son état fondamental joue un rôle très important.

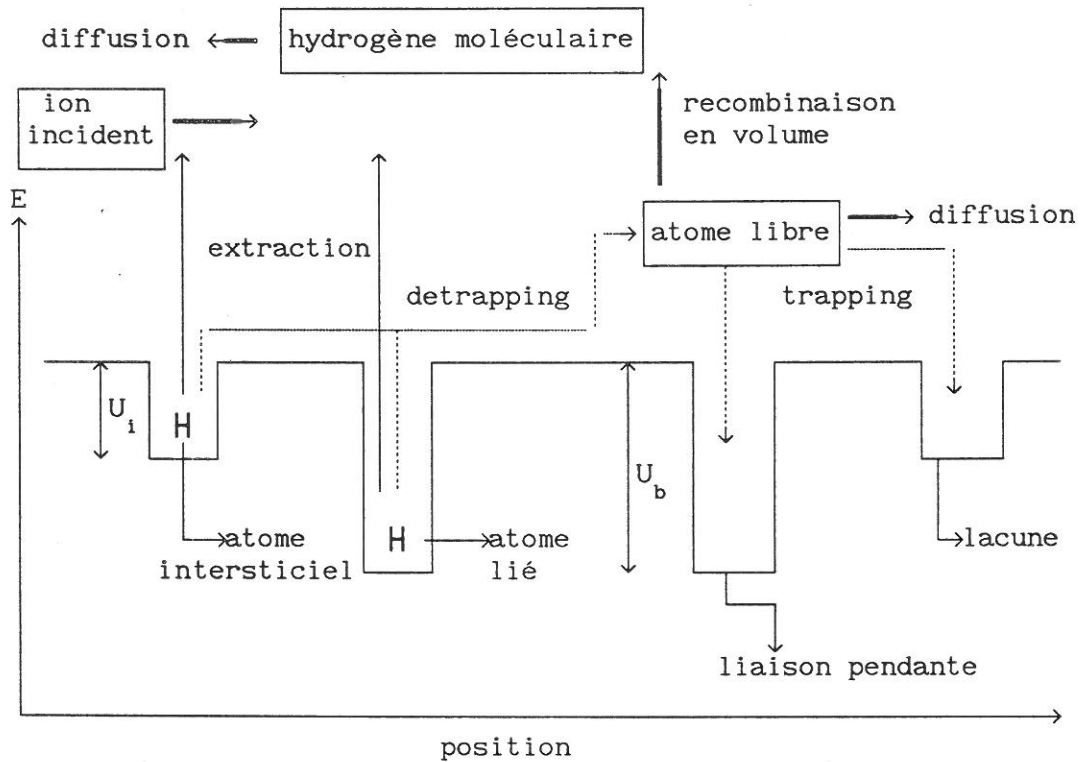
Un des domaines particulièrement représentatifs de ce problème est l'ensemble des études portant sur la réalisation de couches de "carbone-diamant". Les couches obtenues sont en général un mélange de microcristaux de diamant et de carbone graphite.

Les études sur l'obtention de diamant synthétique débutent en 1911 [B41]. En 1950, un dépôt de diamant sur du diamant est obtenu par décomposition thermique de méthane ou d'un mélange méthane hydrogène. On s'aperçoit alors que le chauffage du substrat à 1000°C en présence de  $H_2$  permet une attaque préférentielle du graphite (vis à vis du diamant). En 1970 une mini révolution est amenée par l'utilisation de techniques conduisant à la décomposition de  $H_2$ , avec lesquelles les dépôts obtenus contiennent une proportion de graphite nettement plus faible.

L'atome d'hydrogène pourrait avoir un rôle stabilisateur des

liaisons  $sp^3$  (typiques du diamant) et destructeur des liaisons  $sp^2$  (graphite) [B42]. Un modèle dynamique de la rétention et du dégagement des atomes d'hydrogène dans un film de carbone diamant hydrogéné a été étudié par Sugai et al [B43].

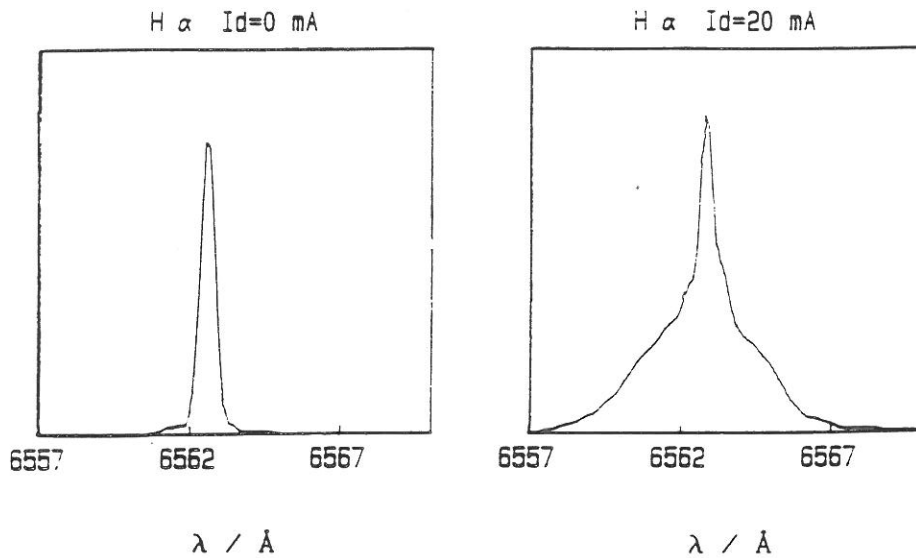
Le schéma ci après illustre la complexité des mécanismes invoqués.



Dans un cadre plus général, de nombreuses études de spectroscopie d'émission ont été (et sont) menées sur l'hydrogène, en particulier sur la raie  $H_{\alpha}$  de l'hydrogène atomique dans des milieux de dépôts.

La plupart ont mis en évidence une raie possédant un "pedestal" très élargi, lié à la présence d'atomes rapides. A titre d'exemple nous reproduisons ci dessous quelques résultats obtenus lors d'études particulières menées à l'ETCA sur des milieux utilisés en vue de l'élaboration de couches minces de carbures métalliques et plus particulièrement sur les mélanges argon-méthane (Persuy P, Degout D, rapport DRET-GR3 87-1080 1,2, et 3)

Les figures suivantes ont été enregistrées au voisinage d'un substrat polarisé ( $I_d \neq 0$ ) ou non ( $I_d = 0$ ).



Enregistrement de la raie  $H_{\alpha}$  à deux courants de décharge

figure b1

Le spectre enregistré à un courant de décharge nul montre une raie fine, caractéristique de la présence d'une population d'atomes "lents" alors que le spectre obtenu à  $I_d=20$  mA est complètement différent: de larges ailes se développent, ce qui trahit la présence d'atomes rapides. Plus précisément, si l'on suppose une symétrie spatiale dans la direction perpendiculaire à l'axe de visée il est possible d'obtenir la fonction de distribution en énergie translationnelle des atomes dans la direction d'observation, à partir du profil des raies. En supposant que la seule cause d'élargissement à prendre en compte est l'élargissement Doppler, la courbe :

$$Y = - \frac{\partial F(\lambda)}{\partial \lambda} ; X = \frac{1}{2} mc^2 (\Delta\lambda/\lambda_0)^2, \quad (1)$$

où :

$-F(\lambda)$  représente le profil de la raie et où  $\Delta\lambda = |\lambda - \lambda_0|$ , est proportionnelle à cette distribution. La figure suivante présente les résultats obtenus avec les deux spectres précédents: à  $I_d=0$  la grande majorité des atomes ont une énergie proche de 0.6 eV, une faible proportion d'atomes "rapides" est cependant décelable avec une énergie d'environ 7 eV; à  $I_d=20$  mA cette population d'atomes à 7 eV est nettement plus importante, alors qu'apparaît un troisième

groupe d'atomes très énergétiques avec des énergies comprises entre 35 et 125 eV.

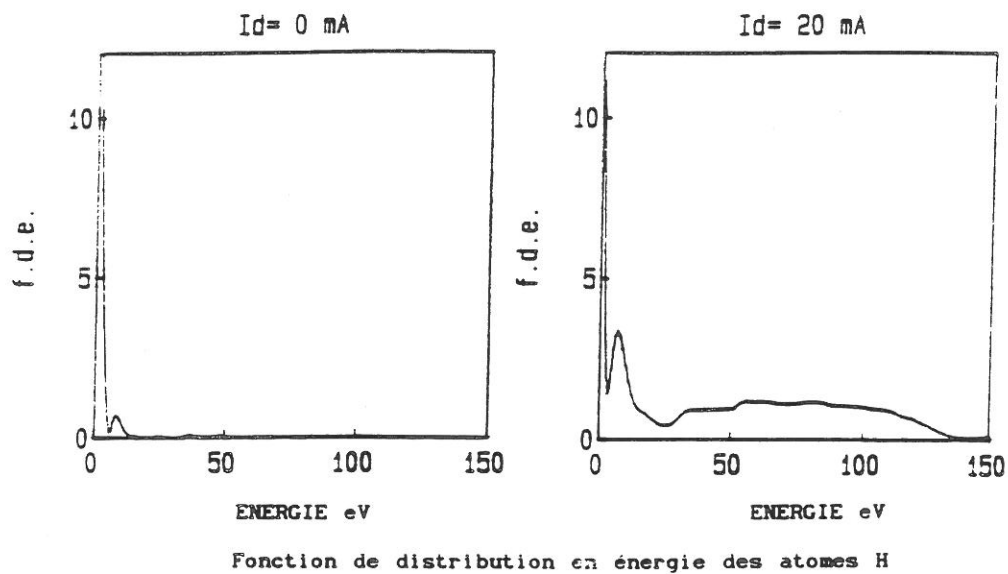
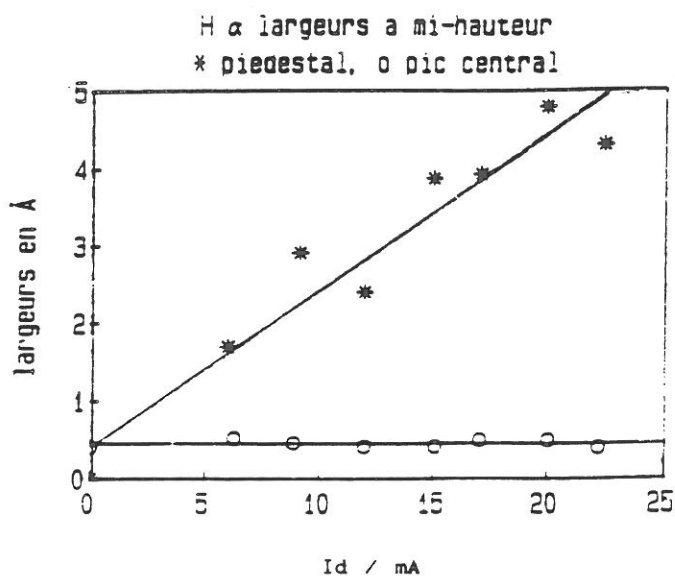


figure b2

La figure qui présente en fonction du courant de décharge l'évolution des largeurs à mi-hauteur du pic central et du "pedestal" de la raie  $H\alpha$  montre que les atomes "lents" sont peu sensibles au courant alors que la largeur du pedestal augmente quasi linéairement avec le courant de décharge.

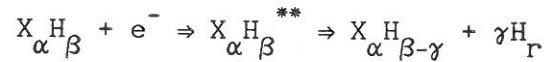


Evolution des largeurs à mi-hauteur en fonction du courant

figure b3

Différents processus ont été envisagés pour expliquer la production d'atomes rapides  $H_r$  :

-dissociation de molécules  $X H_{\alpha\beta}$

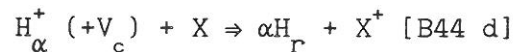


C'est le processus envisagé pour  $SiH_4$ , [B44 a) et b)].

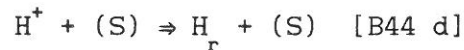
-ionisation dissociative de  $H_2$  par des électrons rapides



-échange de charge (dissociatif) après accélération dans la chute cathodique ( $V_c$ )



-rétrodiffusion d'ions recombinés à la surface de la cathode



Là encore, la situation est relativement complexe.

Ces deux exemples montrent qu'à tous les niveaux: à la surface, dans le volume et à l'interface, l'atome peut avoir une influence importante sur les mécanismes conduisant à un dépôt, et que des mesures de densités peuvent apporter une meilleure compréhension de ces mécanismes.

Or les moyens de mesures de densité comme la résonance paramagnétique, l'analyse de masse ou d'autres méthodes [B 45] invoquent soit des volumes mal connus, soit des moyennes sur des lignes de visée; les diagnostics lasers, tels la fluorescence induite ou l'ionisation résonnante, sont parmi les seuls à permettre une très bonne résolution spatiale (et temporelle). En outre la détection limite est faible, et le laser permet des mesures in situ non perturbatives. En contrepartie, la réalisation

de telles expériences est délicate, sur l'hydrogène en particulier eu égard à sa structure (états peu nombreux et d'énergie élevée); l'utilisation de ces techniques, bien que relativement récente, est très prometteuse et en pleine évolution.

Une brève mais intéressante revue des mesures menées par des moyens "lasers" est donnée par T.A Cool [B46].

Outre les méthodes déjà citées (LIF, MPI et REMPI), des méthodes plus "anciennes" ont fourni des résultats intéressants, en particulier des mesures précises de température peuvent être obtenues par des techniques de diffusion Raman (CARS tout particulièrement [B47]).

Les premiers efforts pour obtenir des indications quantitatives sur les densités ont été reportés par Sirkin et Haas [B48].

En 1983, Tjossem et Cool [B18 a)] ont utilisé la REMPI à 364,7 nm pour détecter H, technique utilisée par Celii et Butler [B42 a)] pour obtenir des renseignements (qualitatifs) sur l'atome d'hydrogène dans un environnement de dépôt de carbone-diamant.

Kajiwara et al [B49] ont obtenu des mesures de densité absolues de H, qui leur permettent de mesurer des coefficients de diffusion et de recombinaison à la paroi. Citons enfin les travaux de Kohse-Höinghaus et al [B50] qui étudient par fluorescence à 2 photons (205 nm), la répartition spatiale de H au voisinage d'un filament; des densités absolues sont obtenues après calibrage du signal de fluorescence (calibrage effectué par titration dans une décharge ).

S'agissant de l'effet optogalvanique et de ses applications, le lecteur se référera utilement au colloque international d'Aussois [B51] qui présente un "état de l'art" en 1983.

#### IV] CONCLUSION

Bien que cette revue bibliographique ne soit pas exhaustive, elle donne une idée de la complexité et de la richesse des phénomènes

multiphotoniques. L'évolution rapide de ce(s) domaine(s) laisse prévoir de nombreuses retombées aussi bien "fondamentales" qu'"appliquées" (les japonais (!) vont jusqu'à développer des lasers spécifiques en vue de telles expériences).

Les calculs théoriques nombreux vont pouvoir être comparés à l'expérience grâce à l'apparition de résultats expérimentaux sur des atomes "modélisables" et la situation devrait à cet égard se simplifier; d'autre part si les premières expériences de MPI sur H ont souvent eu lieu dans des situations expérimentales assez éloignées des besoins de la physique "applicable", (jet atomique à 77K, par exemple), des résultats de mesures in situ dans des dispositifs (quasi) industriels sont apparus.



## REFERENCES



- M. J., Phys Rev A34 (1986) 236
- [B14]a)Chou M.S, Chem Phys Lett 114 (1985) 279  
 b) Jonhson Acc Chem Res 44 (1980) 20
- [B15] Baravian G et Sultan G Chem Phys 103 (1986) 417
- [B16] Heaven M, Miller T.A et al Chem Phys Lett 86 (1982) 458
- [B17] Alden M, Edner A, Groptrom P et Svanberg S, Opt Comm 42  
 (1982) 244
- [B18] Brewer P, van Neen N et Bersohn R, Chem Phys Lett 91 (1982)  
 126
- [B19]a)Tjossem P.J.H et Cool T.A, Chem Phys Lett 100 (1983) 479  
 b) Kelleher D.E, Ligare M et Brewer L.R, Phys rev A31 (1985)  
 2747 et id A39(1989) 3912  
 c)Baravian G, Jolly J, Persuy P et Sultan G Chem Phys Lett  
159 (1989) 361
- [B20] Goldsmith J.E.M, Op Lett (1982) 437
- [B21] Saslow W.M et Mills D.L, Phys Rev 187 (1969) 1025
- [B22]a) Schwartz C, Ann Phys 6 (1959) 156  
 b) Schwartz C et Tieman T.J, ibid178
- [B23]a) Zernik W, Phys Rev 133 (1964) 117; ibid 135 (1964) 51  
 b) Zernik W et Klopfenstein R.W, J Mat Phy 6 (1965) 262  
 c) Gontier Y et Trahin M, Phys Rev 172 (1968) 83; ibid A4  
 (1971) 1896  
 d)Chan F.T et Tang C.L, Phys Rev 185 (1969) 42
- [B24] Klarsfeld S, Nuovo Cimento Lett 1 (1969)682; ibid 2 (1969)  
 548
- [B25] Gold A et Bebb H.B, Phys Rev 143 (1966) 1
- [B26] Dalgarno A et Lewis J.T, Proc R Soc London A 233 (1956) 40
- [B27] Haque S.N et Mustapha M.G, Can J Phys (1987) 65 1178
- [B28] Keldysh L V, Sov Phys JETP 20 (1965) 1307
- [B29] Shakeshaft R et Potvliege R.M, Phys Rev A36 (1987) 5478
- [B30] Manakov N.L, Ovsiannikov V.D et Rapoport L.P, Phys Rep 141  
 (1986) 319
- [B31] Chu S.I, Adv At Mol Phys 21 (1985) 197
- [B32] Potvliege R.M et Shakeshaft R, Phys Rev A38 (1988) 1098
- [B33]a)Federov M.V et Movsesian A.M, J Opt Soc Am B5 (1988) 850  
 b)Tang X et Shakeshaft R, Z Phys D (At Mol Clust) 5

## REFERENCES

- [B0] Lambropoulos P, Adv At Mol Phys 12 (1976) 87
- [B1] Delcroix J.L Physique des plasmas (1962) ed Dunod
- [B2] Mainfray G et Manus C, Appl Opt 19 (1980) 3934
- [B3]a) Kusch P, Phys rev 93 (1954) 1022; 101 (1956) 627  
 b) Winter J.M, Thèse; Ann de Phys 4 (1959) 745
- [B4]a) Bonsch-Bruevich A.M, et Khodovoi V.A, Sov Phys Usp 85  
 (1965) 3  
 b) Gold A, Two photons spectroscopy dans le cours de l'école Enrico Fermi (Varenna) (1967)
- [B5]a) Voronov G.S et Delone N.B, JETP lett 1 (1965) 66  
 b) Voronov G.S, Delone N.B et Delone G.A, Sov Phys JETP 24  
 (1967) 1122  
 c) Delone G.A et Delone N.B, JETP Lett 10 (1969) 25  
 d) Delone G.A, Delone N.B et Pistoka G.K, JETP Lett 35  
 (1972) 672
- [B6]a) Agostini P, Barjot G., Bonnal J.F, Mainfray G et Morellec J, IEEE J Quant Electr QE4 (1968) 667  
 b) Agostini P, Barjot G, Mainfray G, Manus C et Thebault J, IEEE J Quant Electr QE6 (1970) 782  
 c) Agostini P, Fabre F, Mainfray G, Petite G et Rahman N.K, Phys Rev Lett 42 (1979) 1127
- [B7] Baravian G, Benattar R, Bretagne J, Godart J.L et Sultan G, App Phys Lett 16 (1970) 11
- [B8] Buck J.D, Robie D.C, Hickman A.P, Bamford D.J et Bischel W.K, Phys Rev A (1989)
- [B9] Bokor J, Freeman R.R, White J.C et Storz H, Phys Rev A24 (1981) 612
- [B10] Hänsch T.W, Lee S.A, Wallenstein R et Wieman C, Phys Rev Lett 34 (1975) 307
- [B11] Lecompte C, Mainfray G, Manus C et Sanchez F, Phys Rev Lett 32 (1974) 265
- [B12] Baravian G, Godart J et Sultan G, Phys Rev A25 (1982) 1483
- [B13] Muller H.g, van Linden van den Heuvel H.B et van der Wiel

(1987) 27

- [B34] Cohen.Tannoudji, C. Cargèse Lect Phys 2 (1967) 347
- [B35] Gontier Y et Trahin M, J Phys B 11, (1978) L131
- [B36] Zoller P, J Phys B15 (1982) 2911
- [B37]a) Agostini P, Georges A.T, Wheatley S.E, Lambropoulos P et Levenson M.D, J Phys B 11 (1978) 1733  
b) Gontier Y et Trahin M, J Phys B 12 (1979) 2123, Phys Rev A19 (1979) 264  
c) Dixit S.M et Lambropoulos P, Phys Rev A21 (1980) 168
- [B38] Lompré L.A, Mainfray G, Manus C et Marinier J.P, J Phys B 14 (1981) 4307
- [B39]a)Mollow B.R, Phys Rev 175 (1968) 1555  
b)Agarwal G.S, Phys Rev A1 (1970) 1445  
c)Lecompte C, Mainfray G, Manus C et Sanchez F, Phys Rev A11 (1975) 1009
- [B40] Gontier Y, Rahman N.K et Trahin M, Phys Rev A37 (1988) 4694
- [B41] von Bolton W, Z Elektrochem 17 (1911) 971
- [B42]a) Celii F.G et Butler J.E, App Phys Lett 55 (1989) 1031  
b) Amaratunga G, Putnis A, Clay K et Milne W, App Phys Lett 55 (1989) 634
- [B43] Sugai H, Yoshida S et Toyoda H, App Phys Lett 54 (1989) 1412
- [B44]a)Duchène D, Jauberteau J.L, Aubreton J et Catherinot A Proceed ESCAMPIG Berlin (1986)  
b)Perrin J et Schmitt J.J.M, Chem Phys Lett, 67 (1984) 287  
c)Baravian G, Chouan Y, Ricard A et Sultan G, J App Phys 61 (1987) 5249  
d)Barbeau C, Jolly J et Plain A, Proceed Congrès S.F.P Lyon (1989) 22
- [B45]a)Marshall T.C, Phys Fluid 5 (1962) 743  
b)Ding A, Karlau J, Weise J, Rev Sci Inst 48 (197) 1002  
c)Beynon J.D.E et Cairns R.B, Proc Phys Soc 86 (1965) 1343
- [B46] Cool T.A, Appl Opt 23 (1984) 1559
- [B47] Pealat M, Taran J.P et Moya F, Opt Las Techn 12 (1980) 21
- [B48] Sirkin E.R et Haas Y, Appl Phys 25 (1981) 253
- [B49] Kajiwara T, Inoue M, Okada T, Muraoka K et Akazaki M, Rev

Sci Instr 56 (1985) 2213; id, Jap J App Phys 24 (1985) 870  
[B50] Meier U, Kohse-Höinghaus K, Schäfer L et Klages C.P, Laser  
Applications to Chemical Analysis, 1990, Incline Village, Nevada,  
Vol 2, 101  
[B51] Inter. Coll. on Optog. Spec. & Appli, (1983) Aussois, Supp  
J de Phys, Coll 7, fasc 11.

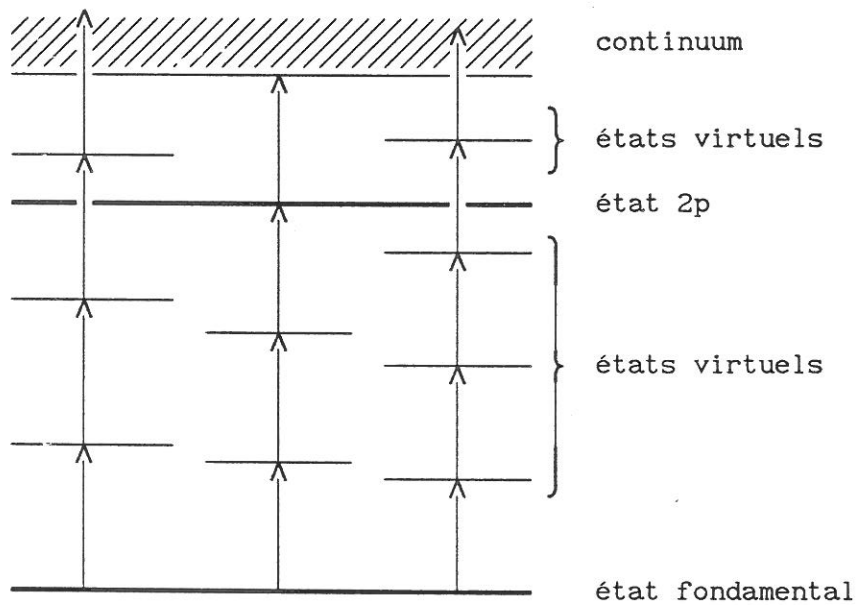
PARTIE  
EXPERIMENTALE





I) PRINCIPE DE L'EXPERIENCE.

Lorsqu' une particule est éclairée par un champ laser intense, son hamiltonien perturbé possède de nouvelles valeurs propres correspondant à des niveaux de très courte durée de vie, appelés niveaux virtuels. La particule peut absorber par l'intermédiaire de ces niveaux, plusieurs photons quasi simultanément, d'où le qualificatif de multiphotonique attaché aux phénomènes de ce type. Lorsque l'énergie cumulée d'un nombre entier de photons est égale à l'énergie d'un niveau réel de la particule, on parle de résonance. Les sections efficaces de ces phénomènes sont très faibles, et ce d'autant plus que le nombre de photons mis en jeu est important. Le schéma ci-après illustre le cas de l'hydrogène atomique lorsque la longueur d'onde des photons est d'environ 364,7 nm, valeur pour laquelle l'énergie de trois photons est égale à celle du niveau n=2 de l'atome d'hydrogène:



$\lambda < 364,7$        $\lambda = 364,7$        $\lambda > 364,7$

$\sigma_4$       «       $\sigma_3$       »       $\sigma_5$

Dans ce cas de figure, l'atome d'hydrogène est ionisé à partir de

son état fondamental, par absorption non résonnante:

de quatre photons, avec une section efficace  $\sigma_4$ , si  $\lambda$ ,  
longueur d'onde des photons, est inférieure à 364,7nm,

de cinq photons, avec une section efficace,  $\sigma_5$ , plus faible,  
si  $\lambda$  est supérieure à 364,7nm,

ou par absorption résonnante de trois photons, avec une section efficace  $\sigma_3$ , relativement grande, suivie de l'absorption d'un quatrième photon, si  $\lambda$  est égale à 364,7nm. La structure de l'atome d'hydrogène étant telle qu'il s'agit dans ce cas d'une double résonance, cette longueur d'onde correspond alors exactement à l'écart d'énergie séparant le niveau  $n=2$  du continuum.

A la longueur d'onde de résonance, le phénomène multiphotonique est donc essentiellement gouverné par un processus où le nombre de photons invoqués dans l'étape "limitante" est moindre que de part et d'autre de cette longueur d'onde; on conçoit aisément que la section efficace soit alors plus grande et que le signal correspondant à la détection de ce phénomène, quel qu'il soit, passe par un maximum à cette longueur d'onde.

C'est cette propriété d'accroissement de la section efficace à la résonance qui a été utilisée dans nos expériences de détection de l'hydrogène par ionisation multiphotonique.

## II) DISPOSITIF EXPERIMENTAL.

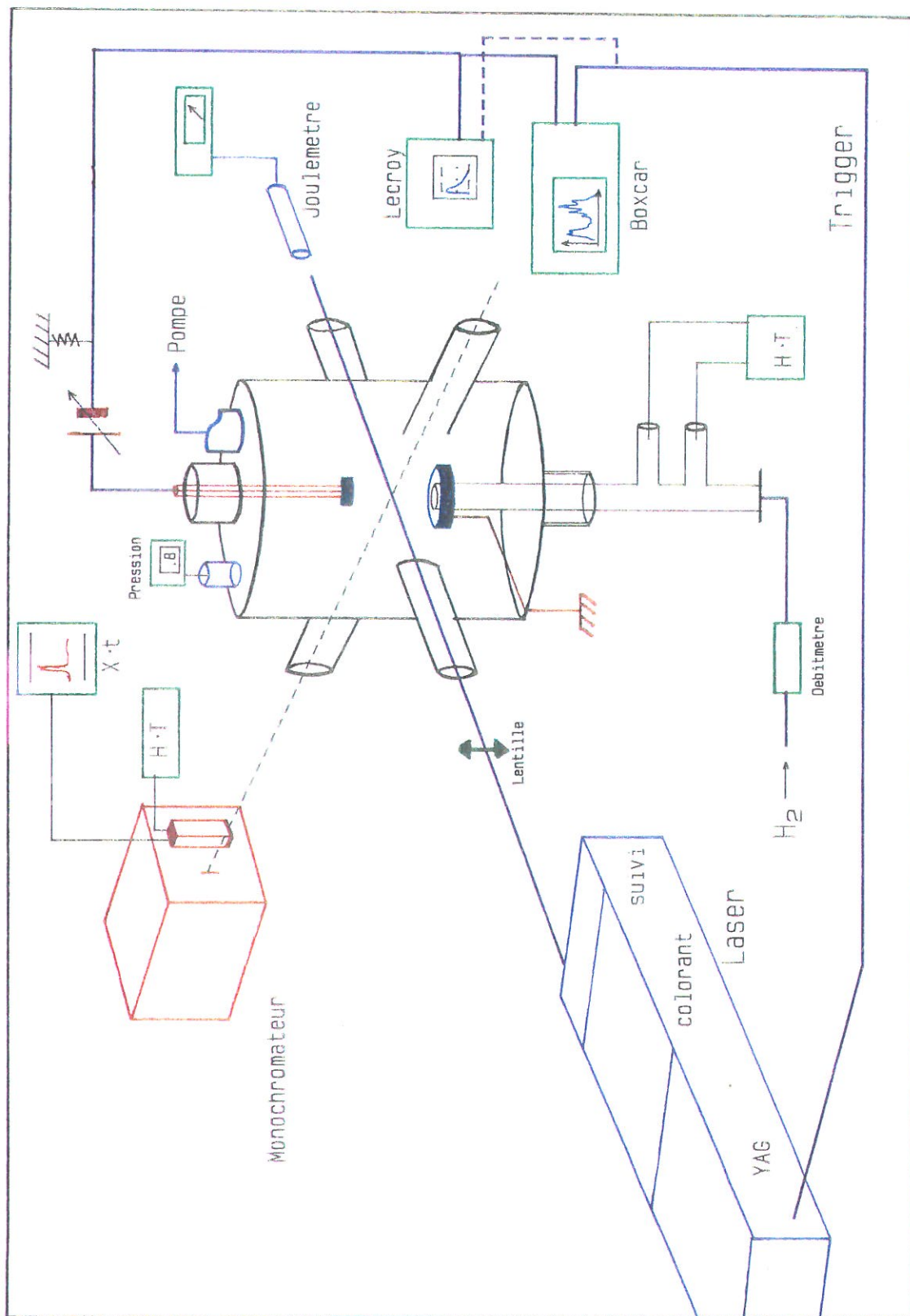
### a) Décharge et enceinte.

Le dispositif expérimental est présenté sur la figure (1). Une décharge en écoulement est initiée dans un tube de 2 cm de diamètre et de 30 cm de longueur, entre deux électrodes distantes de 15 cm par l'intermédiaire d'une alimentation Sorensen pouvant délivrer 15 kV et 100 mA. Une résistance de charge est placée en série avec la décharge. Le gaz utilisé est de l'hydrogène de qualité N 60 (Alphagaz). Le flux de gaz est assuré par l'utilisation d'une pompe Leybould-Heraeus de débit max 1370 l/mn et est contrôlé par un débitmètre massique (MFA). La pression dans l'enceinte est mesurée par l'intermédiaire d'une jauge absolue (Datamatrix R12). Les expériences ont été réalisées à des pressions comprises entre 0,5 et 10 Torr et des courants de décharge variant de 2,5 à 100 mA. Les particules créées dans la décharge sont entraînées par le flux de gaz sur une distance de 30 cm environ, jusqu'à une enceinte en acier. Cette enceinte est un cylindre de 10 cm de rayon et de 20 cm de hauteur percé de quatre hublots. Deux de ceux-ci sont en silice, placés à incidence de Brewster, ils permettent le passage du faisceau laser dans des conditions d'absorption minimum. Les deux autres permettent des observations de spectroscopie d'émission.

### b) Détection et mesures.

Un monochromateur Jobin-Yvon HR640 de longueur focale 64 cm, associé à un photomultiplicateur Hamamatsu R928 est placé en regard du point de focalisation du laser, il lui est adjoit un enregistreur X.t.

Un calorimètre (Scientech) mesure l'énergie laser, il est placé hors de l'enceinte, c'est à dire après le deuxième hublot.



Dispositif expérimental

Figure n° 1

Deux électrodes sont placées à 1,5 cm de part et d'autre du point de focalisation; la première, de forme annulaire, entoure l'extrémité du tube à décharge, elle est reliée à la masse. La deuxième est plane et cylindrique de rayon 3 cm, elle peut être polarisée de - 10 à -300 V par l'intermédiaire d'une alimentation continue (Delta Elektronica), et est connectée au circuit de détection (cf page 77 ).

Les charges créées par l'interaction du faisceau laser avec le gaz sont collectées par l'intermédiaire du champ électrique continu créé entre ces deux électrodes.

Le signal résultant est alors analysé par l'intermédiaire d'un oscilloscope digital (Lecroy 9400) et d'un boxcar moyennneur (EG&G 4420) déclenchés par l'impulsion laser.

### c) Laser.

Le laser utilisé est le modèle Datachrom-5000 de Quantel. Laser pulsé constitué de trois "étages", il permet de générer des photons de longueur d'onde continûment variable, depuis 750 nm dans l'infrarouge jusqu'à 210 nm dans l'ultraviolet.

Le premier étage est constitué par le laser de pompe:

- une tête oscillatrice (barreau solide Néodyme-YAG, YAG pour Yttrium Aluminium Garnet) pompée par deux flashes linéaires. Cette tête est placée dans une cavité optique déclenchée par une cellule de Pockels,
- un amplificateur identique à la tête de l'oscillateur
- deux cristaux KDP (potassium dihydrogène phosphate) doubleur et tripleur de fréquence.

Cet étage peut donc émettre des longueurs d'onde égales à 1064, 532, et 355 nm. A 1064 nm l'énergie délivrée est de l'ordre de 900 millijoules.

Ce faisceau est utilisé en partie pour pomper le laser à colorant

(deuxième étage) qui est constitué :

-d'une cuve parcourue par un colorant en solution, placée dans une cavité optique associée à un réseau qui permet de faire varier la longueur d'onde: l'oscillateur

-de deux amplificateurs, eux aussi pompés par une partie du faisceau issu de l'étage YAG.

Enfin le troisième étage comprend des cristaux mélangeurs et/ou doubleurs éventuels, et un mécanisme de "suivi" permettant d'optimiser la puissance laser lorsque la longueur d'onde varie.

Deux configurations laser ont successivement été utilisées en vue de générer deux gammes de longueurs d'onde.

Dans une première expérience, le colorant utilisé est de la rhodamine 640 . Le doublement de fréquence fournit alors des photons de longueur d'onde variant autour de 307,7 nm. L'énergie moyenne délivrée est de l'ordre de 7 millijoules.

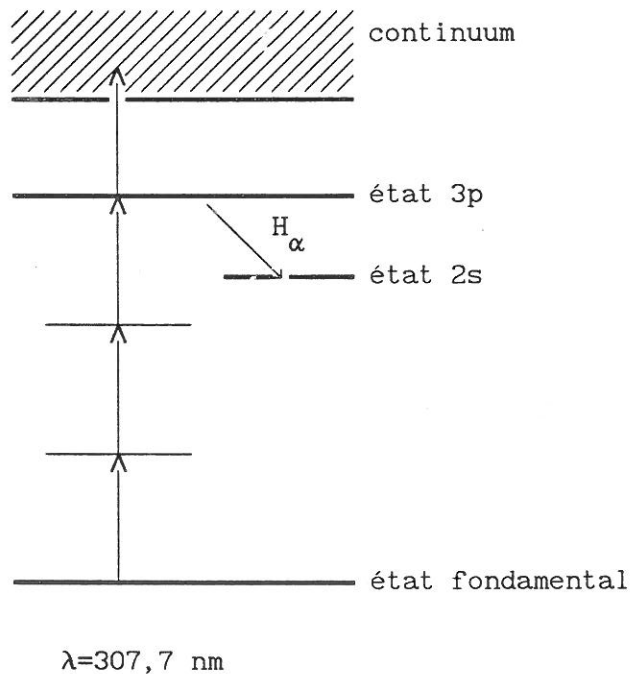
Dans une deuxième expérience, le colorant utilisé est de la fluoresceine 548. Ce colorant émet dans une gamme autour de 555 nm. Les photons produits sont "mixés" dans un cristal KDP avec le résiduel du Nd-YAG, pour produire, par sommation des fréquences, des photons autour de 364 nm. L'énergie moyenne délivrée est de l'ordre de 15 millijoules.

Les caractéristiques générales du laser sont sensiblement : profil temporel (de l'impulsion laser) gaussien de largeur à mi-hauteur 7 ns, diamètre de faisceau : 0,4 cm, fréquence de tir: 10 Hz, divergence nominale inférieure à  $10^{-3}$  rad, et largeur spectrale:  $10^{-2}\text{Å}$  , environ.

Des lentilles de longueurs focales différentes sont utilisées pour focaliser le faisceau laser à l'intérieur de l'enceinte: 5, 10, 20, 40 et 50 cm; dans le cas des deux plus courtes longueurs focales, les lentilles sont placées à l'intérieur de l'enceinte.

### III) EXPERIENCES A 307,7 nm

Une première série d'expériences a été effectuée à des longueurs d'onde autour de 307,7 nm, en vue de détecter soit les ions, soit la fluorescence à 656,28 nm du niveau  $n = 3$  de l'hydrogène atomique (raie  $H_{\alpha}$ ), induite par l'excitation multiphotonique de ce niveau suivant le schéma:



Ici, le niveau  $n=3$  est peuplé à partir du niveau fondamental par l'absorption de trois photons à 307,7 nm, ce niveau peut alors être ionisé par un quatrième photon ou bien se désexciter vers le niveau  $n=2$  en émettant la raie  $H_{\alpha}$ .

Dans cette série d'expériences la gamme d'énergie balayée par le

laser est:  $32467-33112 \text{ cm}^{-1}$ .

#### A) Résultats

Les expériences ayant pour but la mise en évidence de la fluorescence induite ont été effectuées avec une lentille de focalisation du laser de 5 cm de longueur focale. Le monochromateur est placé perpendiculairement à l'axe du faisceau laser et "calé" sur la longueur d'onde de la raie  $H_{\alpha}$ . Le signal issu du photomultiplicateur est enregistré via le "gate integrator" sur un enregistreur X.t. Ces expériences n'ont pas permis de mettre en évidence un signal de fluorescence.

Par contre un effet optogalvanique a pu être observé. Dans ce cas ce sont les charges créées par le faisceau laser qui sont collectées par une des électrodes placées en regard du point de focalisation. Le signal résultant est enregistré en fonction de la longueur d'onde laser. Le "spectre" obtenu lorsque la longueur d'onde des photons varie de 303,5 à 308,8 nm environ est présenté sur la figure (2). Au lieu d'un pic de résonnance à 307,7 nm, correspondant à l'ionisation de l'atome via le niveau  $n=3$ , le signal obtenu est beaucoup plus complexe et suggère l'intervention de phénomènes moléculaires; la présence de pics implique la mise en jeu de niveaux intermédiaires de résonnance. Les possibilités d'ioniser la molécule d'hydrogène à ces longueurs d'ondes ont donc été étudiées.

#### B) discussion

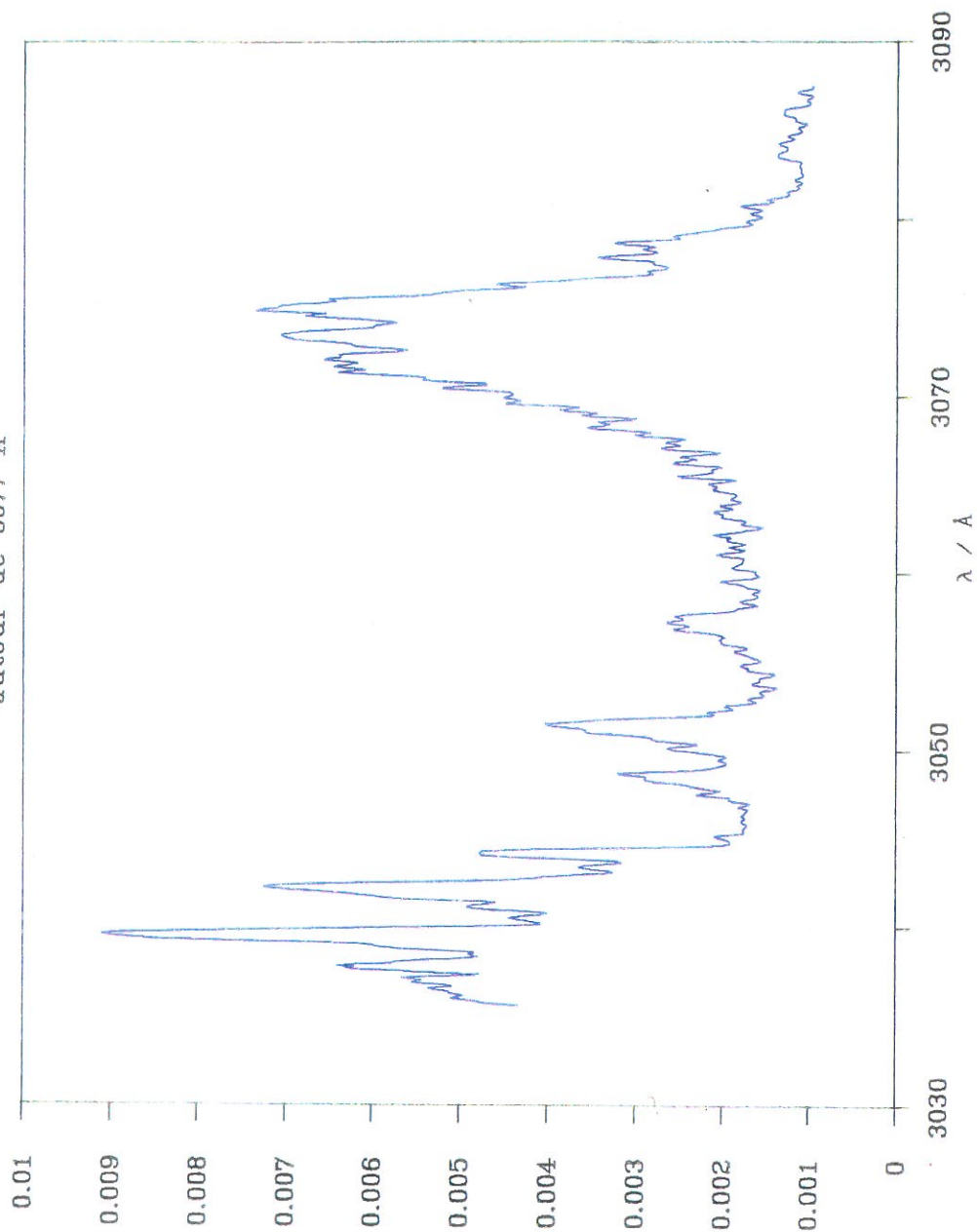
##### i) Etats de départ

Les espèces a priori présentes dans la post-décharge sont : des atomes, des états métastables moléculaires ( $c_3\Pi_u$  et  $a_3\Sigma_u^+$  par exemple) et évidemment des molécules dans l'état  $X^1\Sigma_g^+$  (niveau fondamental de  $H_2$ ). Des expériences menées sans décharge n'ont pas montré de différences significatives avec celles effectuées



# Effet optogalvanique

autour de 3077 Å



Signal optogalvanique enregistré autour de 307.7 nm.

P=1 torr, Id=30 mA

signal / V

Figure n° 2

décharge allumée, il convient d'admettre que seul le niveau fondamental de  $H_2$  ( $X^1\Sigma_g^+$ ,  $v=0, j$ ) est à prendre en compte.

S'agissant des niveaux rotationnels de ce niveau, si on les suppose en équilibre thermique à une température  $T$ , leur distribution est proportionnelle à la loi de Maxwell Boltzmann tenant compte des poids statistiques de chaque niveau rotationnel:

$$N_j \propto (2J+1) \exp(-B J (J+1) hc / kT) \\ \propto (2J+1) \exp(-B J (J+1) 1.43875 / T) \quad (1)$$

où  $B$  est la constante rotationnelle du niveau  $X^1\Sigma_g^+$  :  $B = 59,33 \text{ cm}^{-1}$ , soit:

$$N_j \propto (2J+1) \exp(- J (J+1) 85,361 / T) \quad (1 \text{ bis})$$

La distribution rotationnelle est représentée sur la figure (3) pour deux températures: 300 et 400 K, le niveau rotationnel le plus peuplé est  $j = 1$  et la population des niveaux devient négligeable lorsque  $j > 4$ .

#### ii) Règles de sélection

Les règles de sélection [ 1 ] pour des transitions à  $p$  photons s'obtiennent en considérant ces transitions comme  $p$  transitions successives à un photon.

En rappelant que: - les propriétés de symétrie de la fonction d'onde totale d'un niveau rotationnel donné, par rapport à un plan contenant l'axe internucléaire, sont symbolisées par + ou - (qu'il ne faut pas confondre avec les symboles + ou - placés en exposant droit dans par exemple  $\Pi^+$ , qui se réfèrent aux propriétés de symétrie de la fonction d'onde électronique),

- dans le cas de molécules homonucléaires, les propriétés de symétrie de la fonction d'onde totale, par rapport à un échange des noyaux,, sont symbolisées par  $s$  ou  $a$ ,

-dans le cas de molécules diatomiques dont les noyaux ont même charge, les propriétés de symétrie de la fonction

# DISTRIBUTION ROTATIONNELLE

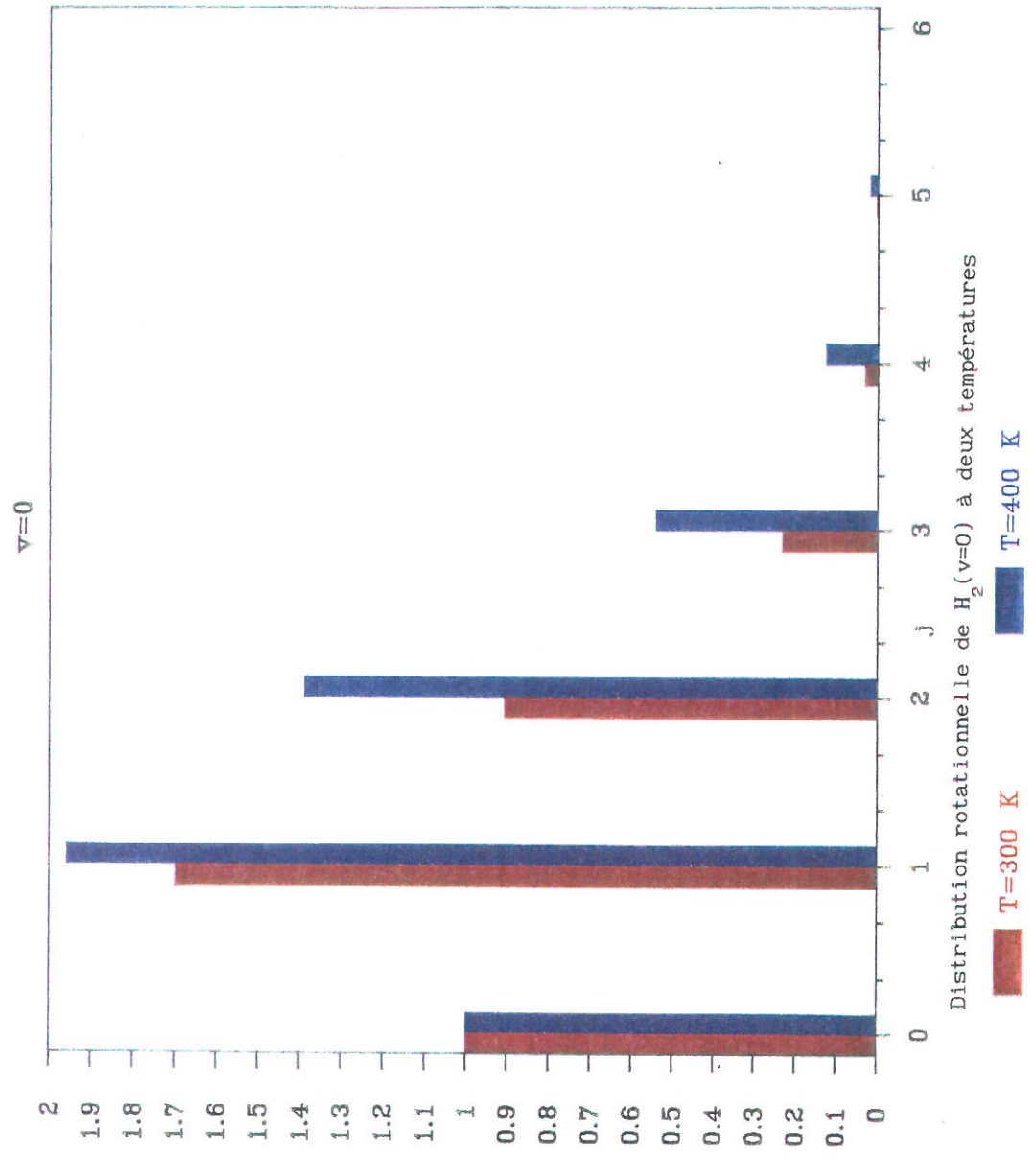


Figure n° 3

d'onde électronique, par rapport au centre de symétrie, (parité) sont symbolisées par g ou u, et en symbolisant les transitions permises par  $\Leftrightarrow$ , ces règles de sélection peuvent être exprimées de la façon suivante, pour des transitions dipolaires électriques:

a) règles respectées quel que soit le cas de couplage:

- le principe de Franck-Condon reste valable
- $\Delta J = 0, \pm 1, \pm 2, \dots, \pm p$  avec (J=0) vers (J=0) interdite si  $p = 1$
- si p est impair  $+ \Leftrightarrow -$ 
  - $s \Leftrightarrow s, a \Leftrightarrow a$  (noyaux identiques)
  - $g \Leftrightarrow u$  (noyaux de même charge)
- si p est pair  $+ \Leftrightarrow +, - \Leftrightarrow -$ 
  - $s \Leftrightarrow a$  (noyaux identiques)
  - $g \Leftrightarrow g, u \Leftrightarrow u$  (noyaux de même charge)

b) règles respectées dans les cas a) et b) de Hund:

- le spin doit être conservé  $\Rightarrow \Delta S = 0$
- $\Delta \Lambda = 0, \pm 1, \pm 2, \dots, \pm p$  avec ( $\Sigma^+$ ) vers ( $\Sigma^-$ ) interdite

c) règles respectées dans le cas a) de Hund:

- $\Delta \Sigma = 0$
- $\Delta \Omega = 0, \pm 1, \pm 2, \dots, \pm p$  avec  $\Delta J = 0$  interdit pour  $\Omega = 0$  vers  $\Omega = 0$  si  $p = 1$

d) règles respectées dans le cas b) de Hund

- $\Delta K = 0, \pm 1, \pm 2, \dots, \pm p$ 
  - avec pour  $\Sigma$  vers  $\Sigma$ :  $\Delta K$  pair interdit si p impair
  - $\Delta K$  impair interdit si p pair

Cette restriction est une conséquence de la règle :

$$\left\{ \begin{array}{l} \Sigma^+ \text{ vers } \Sigma^- \text{ interdit} \\ + \Leftrightarrow - \text{ à un photon} \end{array} \right.$$

Ces règles de sélection sont résumées dans le tableau suivant tab [1].

∀ couplage			
P	Symétrie	J	
pair	$\begin{cases} g \Leftrightarrow g \\ u \Leftrightarrow u \\ s \Leftrightarrow a \\ + \Leftrightarrow + \\ - \Leftrightarrow - \end{cases}$	$\Delta J = 0, \pm 1, \pm 2 \dots, \pm P$	
impair	$\begin{cases} g \Leftrightarrow u \\ s \Leftrightarrow s \\ a \Leftrightarrow a \\ + \Leftrightarrow - \end{cases}$	$\Delta J = 0, \pm 1, \pm 2 \dots, \pm P$ $j=0 \Rightarrow j=0$ interdit si $P=1$	
cas a) et b)			
		spin	$\Lambda$
		$\Delta S = 0$	$\Delta \Lambda = 0, \pm 1, \pm 2 \dots, \pm P$ $\Sigma^+ \Leftrightarrow \Sigma^-$ interdit
cas a)			
		spin	$\Omega$
		$\Delta \Sigma = 0$	$\Delta \Omega = 0, \pm 1, \pm 2 \dots, \pm P$ $\Delta J = 0$ interdit pour $\Omega = 0 \Leftrightarrow \Omega = 0$ si $P=1$
cas b)			
P		K	
pair	$\Delta K = \text{impair}$ interdit pour $\Sigma \Leftrightarrow \Sigma$	$\Delta K = 0, \pm 1, \pm 2 \dots, \pm P$ $\left\{ \begin{array}{l} \Sigma^+ \Leftrightarrow \Sigma^- \text{ interdit} \\ + \Leftrightarrow - \text{ (1 photon)} \end{array} \right.$	
impair	$\Delta K = \text{pair}$ interdit pour $\Sigma \Leftrightarrow \Sigma$		

tableau [1]

Règles de sélection multiphotoniques

Notons enfin que les différentes branches correspondant à un  $\Delta J$  donné, ont reçu une dénomination spéciale (Mulliken) [2] (ici  $\Delta J$  doit être compris comme:  $[J(\text{état supérieur})-J(\text{état inférieur})]$ ):

$\Delta J=-3$  branche N,  $\Delta J=-2$  branche O,  $\Delta J=-1$  branche P

$\Delta J=0$  branche Q

$\Delta J=1$  branche R,  $\Delta J=2$  branche S,  $\Delta J=3$  branche T

etc.

### iii) Etats d'arrivée

La figure (4) représente le diagramme simplifié des courbes de potentiel des niveaux de la molécule  $H_2$  (d'après Sharp [3]). Sur ce schéma sont reportées des flèches dont la longueur correspond à l'énergie de photons de longueur d'onde 307,7 nm. Si l'absorption est symbolisée à partir du niveau fondamental de l'hydrogène atomique, (partie droite du diagramme), on retrouve le schéma présenté précédemment, d'ionisation de l'atome à 3+1 photons via l'état 3p.

Par contre si le niveau de départ est le niveau fondamental de la molécule, seule l'absorption d'un minimum de trois photons permet, en respectant le principe de Franck-Condon, d'atteindre un niveau excité de la molécule, l'absorption d'un quatrième photon conduisant à l'ionisation.

Le niveau de départ est l'état  $X^1\Sigma_g^+$ , dans ce cas, ( $^1\Sigma$ ), notons tout d'abord qu'il n'y a pas de distinction à faire entre les cas a) et b) de couplage dans la classification de Hund.

D'après les règles de sélection précédemment énoncées [tab 1], appliquées à  $P=3$  :

-l'état de départ étant un état singulet, seules les transitions vers un état singulet sont permises. Ceci élimine les possibilités  $c^3\Pi_u$ ,  $a^3\Sigma_u^+$ ,  $e^3\Sigma_u^+$  ainsi que l'état (répulsif)  $b^3\Sigma_u^+$ .

-les états E,  $F^1\Sigma_g^+$ ,  $H^1\Sigma_g^+$ ,  $I^1\Pi_g$  et  $B^1\Sigma_g^+$  sont interdits par l'obligation  $g \Leftrightarrow u$ .

Les seuls états susceptibles d'entrer en interaction avec l'état

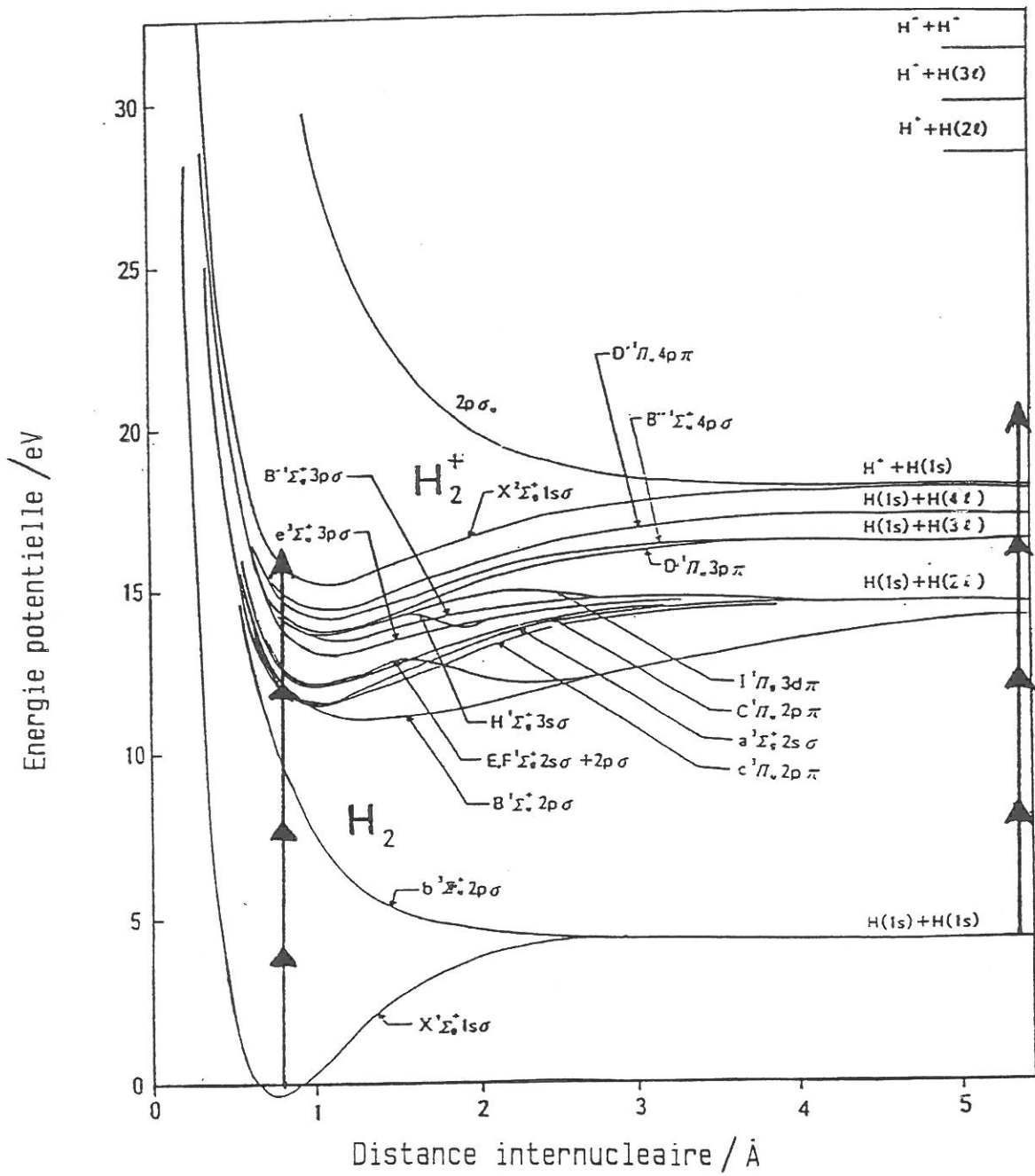


Figure n° 4  
 Courbes de potentiel de  $H_2$

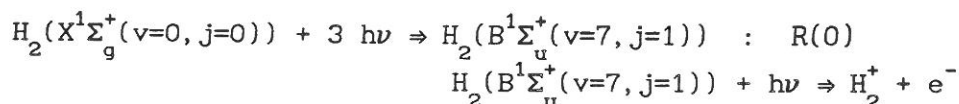
$X^1\Sigma_g^+$ , sont donc les états  $B^1\Sigma_u^+$  et  $C^1\Pi_u$ . En outre les seules branches susceptibles d'être observées sont les branches P et R.

La figure (5) reprend en détail une partie de la figure (4). On a représenté les courbes de potentiel de ces deux états avec leurs premiers niveaux vibrationnels ainsi que la plage de variation de l'énergie additionnée de trois photons. Cette plage est  $97402-99337 \text{ cm}^{-1}$ . Il faut noter que si le niveau de départ n'est pas  $j=0$ , comme cela a été supposé sur la figure, la représentation de cette plage doit être décalée vers le haut de l'écart d'énergie entre le niveau de  $j$  considéré et le niveau  $j=0$ . Ceci nous conduit à conclure que, compte tenu de la distribution rotationnelle présentée plus haut, pour les transitions de  $X^1\Sigma_g^+$  vers  $B^1\Sigma_u^+$  (appelées bande de Lyman) seuls les niveaux vibrationnels  $v=6$  et  $7$  sont à prendre en compte, et pour les transitions de  $X^1\Sigma_g^+$  vers  $C^1\Pi_u$  ( bande de Werner) seul le niveau vibrationnel  $v=0$  est à prendre en compte. Sur ces bases, l'identification précise des transitions observées a été faite à partir des tables données par Dabrowski et Herzberg [ 4 ].

La figure (6) résume les résultats obtenus. On a reporté la dénomination des transitions à trois photons à une abscisse correspondant à leur énergie, de nombreuses coïncidences sont visibles sur cette figure.

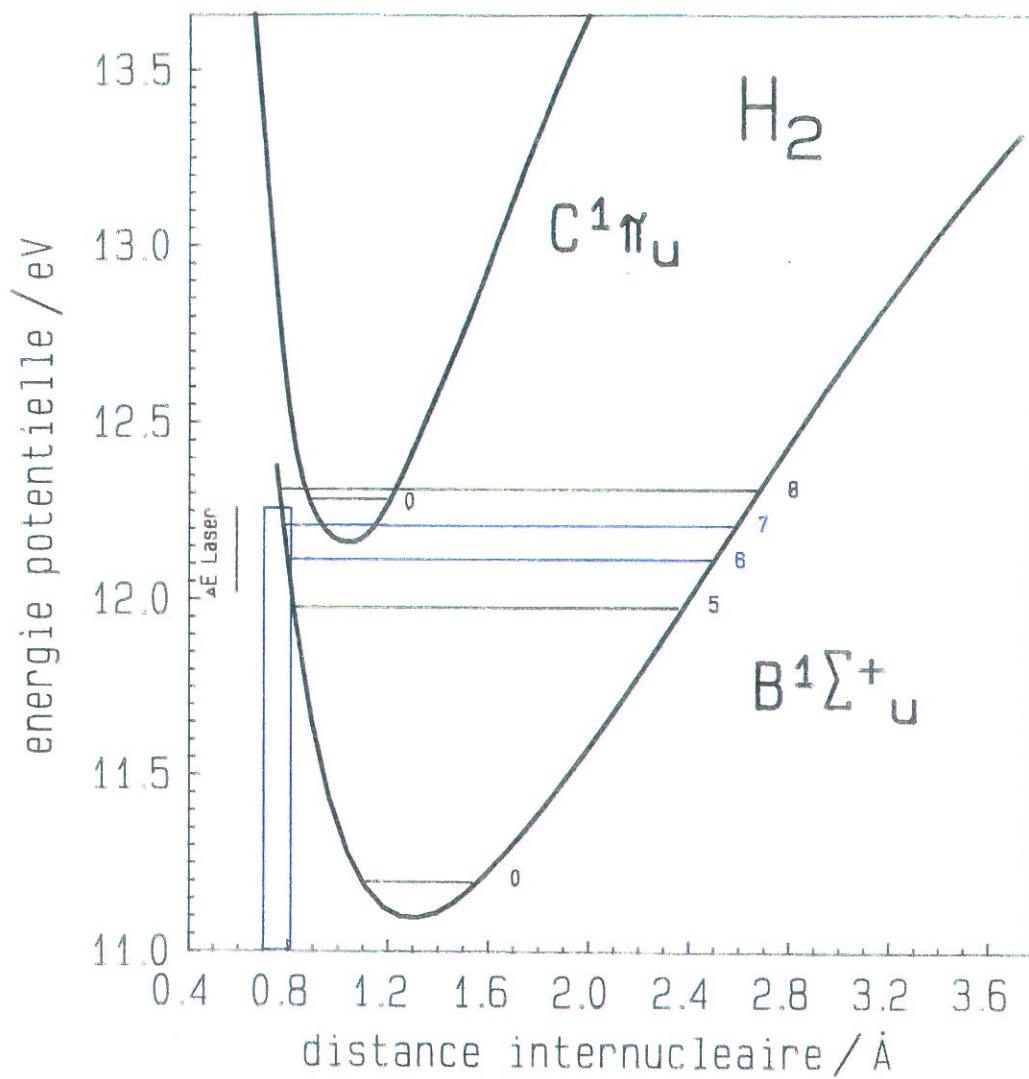
Dans la région du "spectre":  $98000-98800 \text{ cm}^{-1}$  de la figure (6) les raies sont relativement bien résolues, elles correspondent aux branches P et R des transitions  $v=0 \Rightarrow v=7$  de la bande de Lyman, suivi de l'ionisation subséquente à l'absorption d'un quatrième photon, soit les réactions:

7-0 branche R :





Courbes de potentiel



Courbes de potentiel de  $H_2$  (détail)  
la gamme laser est indiquée en rouge

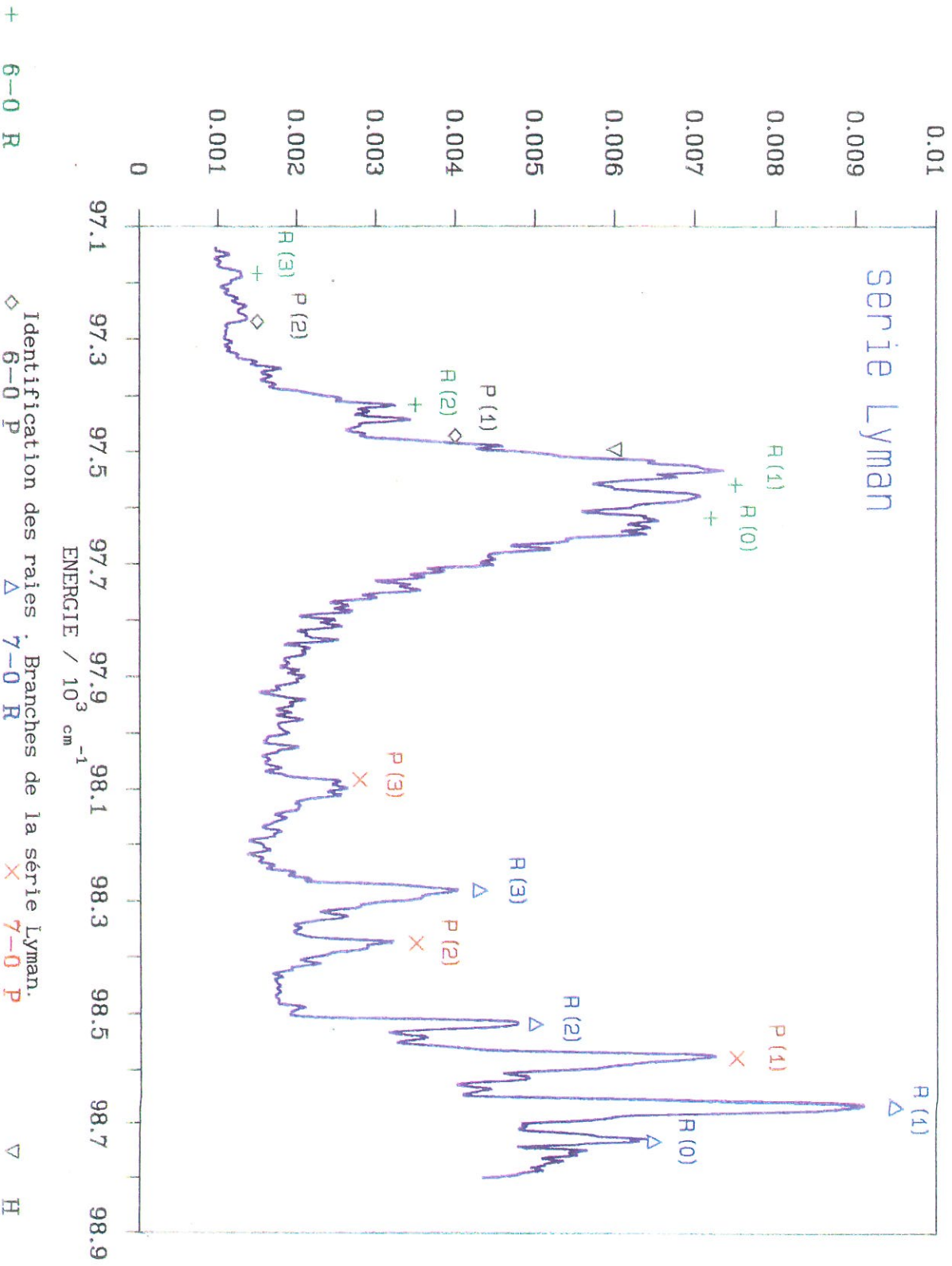
Figure n° 5



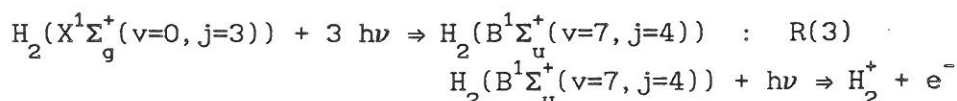
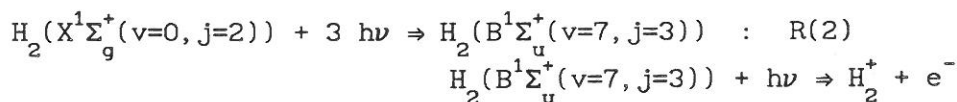
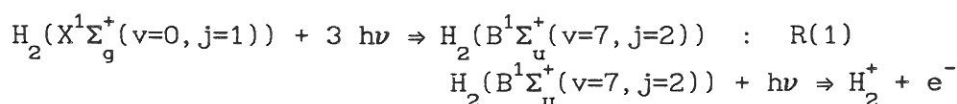


# Effet optogalvanique

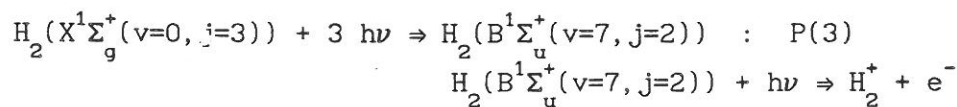
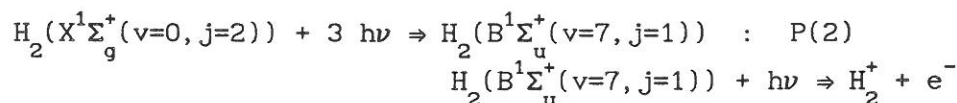
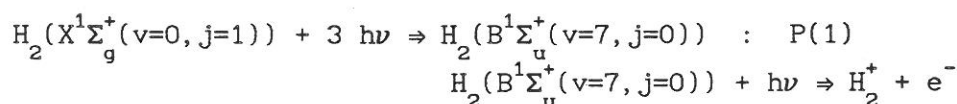
autour de 3077 Å



signal / mV  
Figure n° 6

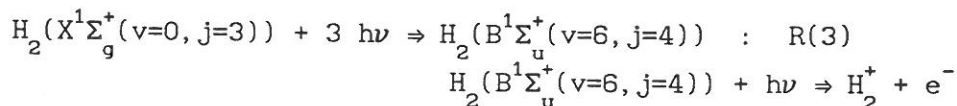
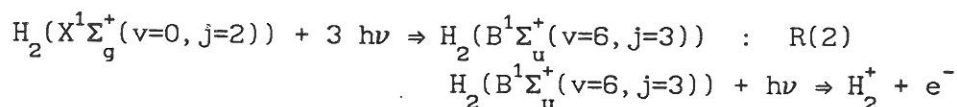
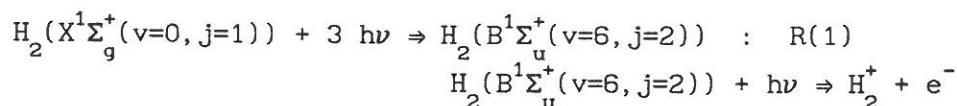
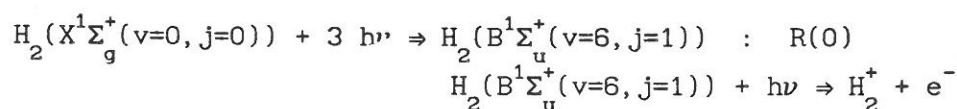


7-0 branche P :

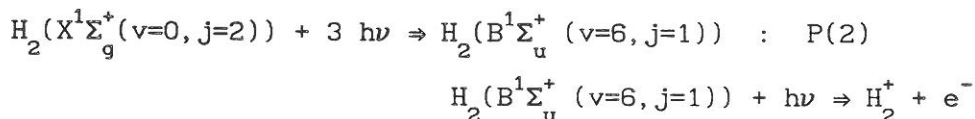
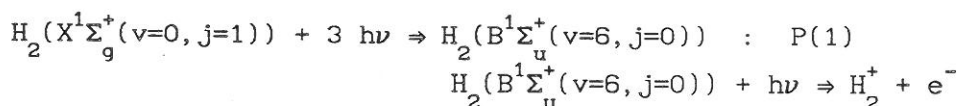


Dans la région 97100-98000  $\text{cm}^{-1}$  on s'attend à trouver des raies correspondant aux réactions:

6-0 branche R :



6-0 branche P :



C'est aussi dans cette gamme que le signal provenant de l'ionisation de l'atome prend place.

Cependant, dans cette région les raies ne sont pas clairement résolues. Si les transitions évoquées sont très certainement responsable d'une partie du signal, il semble que d'autres phénomènes qui ne sont pas clairement identifiés prennent place à ces énergies. Il est possible que le radical OH (provenant de la vapeur d'eau) soit présent dans l'enceinte et perturbe le signal.

iv) Température rotationnelle

A partir de spectres comme celui de la figure (6), il devrait être possible de déterminer la température rotationnelle de l'état  $X^1\Sigma_g^+$  ( $v=0$ ). Dans ce but, nous considérerons les amplitudes  $A(j'')$  des "raies" de la branche R, qui doivent être corrigées du poids statistique des niveaux rotationnels  $(2J+1)$  et de la dégénérescence due au spin nucléaire  $(2T+1)$  avec  $T=0$  pour  $J$  pair et  $T=1$  pour  $J$  impair); en outre elles devraient être corrigées aussi des forces d'oscillateur, mais ces dernières ne sont pas connues pour des transitions à trois photons, nous les supposons égales, tout au moins à l'intérieur d'une même branche, cette hypothèse semblant validée par les expériences de Bonnie [ 5 ]), pour la branche Q et les niveaux  $j''=1,2,3,4$ .

La température rotationnelle est alors donnée par l'inverse de la pente de la droite, si droite il y a, passant au mieux par les points de la courbe:

$$\text{Ln} \left[ \frac{A(j'')}{(2j''+1)(2T+1)} \right] = f \left[ 85,361 j'' (j''+1) / T \right] [\text{cf i)]}$$

Cette courbe est représentée sur la figure (7) où sont aussi données les régressions linéaires obtenues dans deux cas:

si l'on considère les quatre niveaux  $j''=0,1,2,3$ , la courbe obtenue n'est qu'approximativement représentée par une droite, la température rotationnelle déduite dans ce cas est de  $342 \pm 50$  K,

par contre, si le niveau  $j''=1$  n'est pas pris en compte, les points sont bien alignés, la température est alors de  $293 \pm 30$  K.

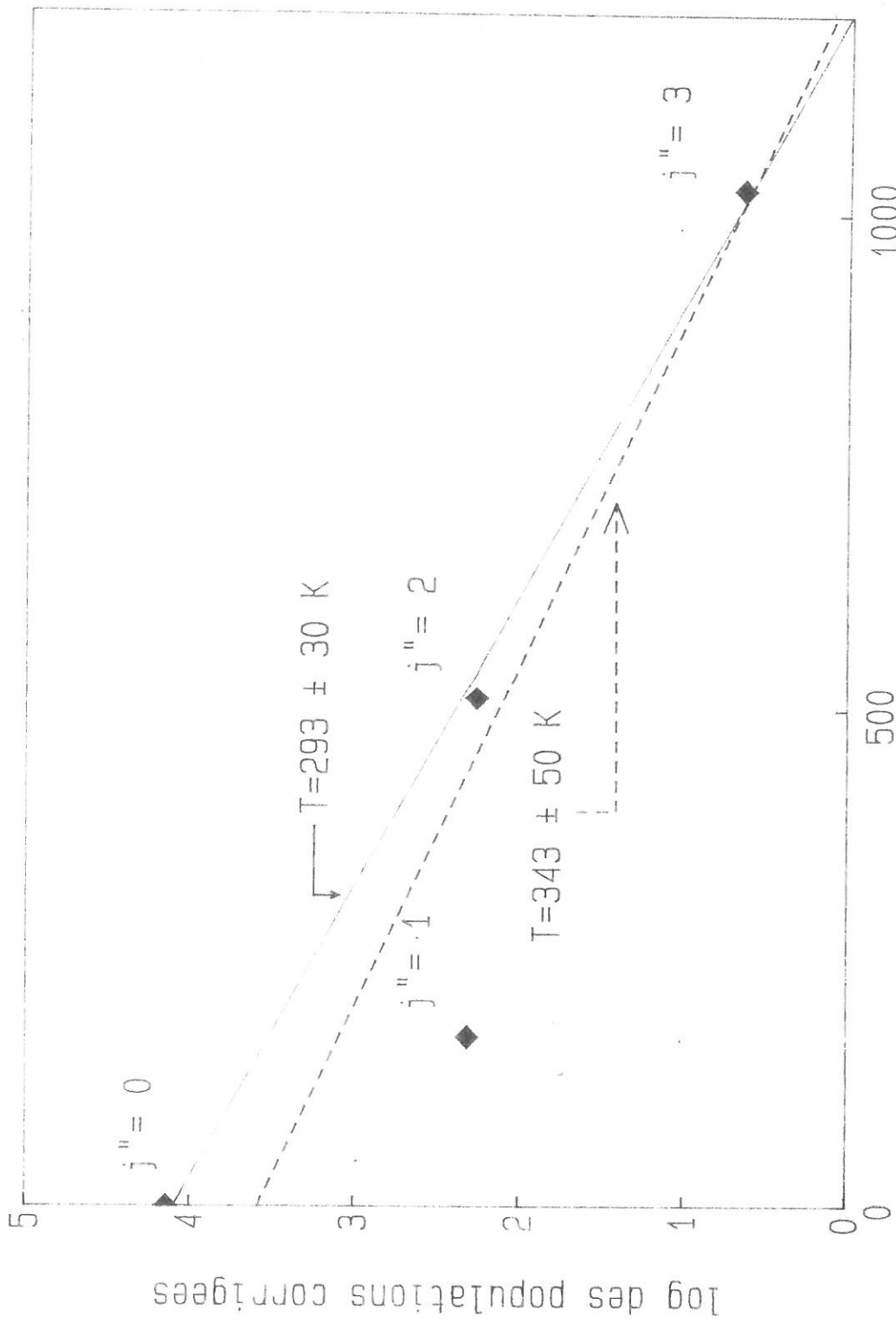
Cependant les raies n'étant pas complètement résolues, les intensités prises en compte sont relativement imprécises. En particulier il se peut que les populations de tout ou partie des niveaux  $j''=0,2$  et  $3$  soient surestimées. On trouve en effet dans les tables de Dabrowski des transitions à des énergies proches de celle des transitions R(2), R(3) et dans une moindre mesure R(0), il s'agit de transitions de la bande de Werner ( $X^1\Sigma_g^+, v=0 \Rightarrow C^1\Pi_u, v=0$ ). Ces coïncidences sont données ci-dessous:

Lyman 7-0	Werner 0-0
98734,03 R(0)	98747,82 Q(3)
98524,36 R(2)	98524,12 Q(4)
98287,08 R(3)	98290,71 P(4)

Aucune coïncidence n'a été trouvée pour la raie R(1), ce qui est donc compatible avec l'hypothèse avancée.

Cependant, le fait que ces transitions appartiennent à une autre bande et que les autres raies de ces branches Q (3,2,1 et 0 par exemple) n'aient pas pu être mises en évidence, ne rend pas possible la déconvolution des signaux.

Temperature rotationnelle



Détermination de la température rotationnelle de  $\text{H}_2$  hors décharge

$P=1 \text{ torr}$ ,  $I_d=30\text{mA}$

— calcul  $j''=0, 2$  et  $3$  - - calcul  $j''=0, 1, 2$  et  $3$

Figure n° 7



D'autre part, le comportement des raies de la branche P pour  $j''=1,2$  ou 3 est très similaire à celui de la branche R pour les mêmes  $j''$ , mais aucune coïncidence n'a pu être trouvée dans ce cas avec les transitions donnant lieu aux signaux étiquetés P(2) et P(3), ce qui semble infirmer l'hypothèse. Notons enfin qu'il est possible que la transition correspondante à la raie R(1) soit "saturée", et que le signal résultant ne soit pas proportionnel à la population du niveau considéré.

La détermination d'une température rotationnelle précise, à partir de ces seules expériences est donc difficile. Des spectres plus étendus et mieux résolus devrait cependant le permettre.

Notons qu'aux pressions considérées, de l'ordre du Torr, le libre parcours moyen est de l'ordre de 0.2 à 1 mm, sur une distance de 30 cm, les particules effectuent donc environ 600 collisions, ce qui peut être suffisant pour thermaliser les molécules issues de la décharge et conduirait donc à une température égale à environ 295 K (température des parois de l'enceinte), ce qui est compatible avec les températures déduites plus haut.

#### v) Conclusion

Cette série d'expériences a permis de mettre en évidence l'ionisation multiphotonique résonnante de l'état fondamental de la molécule d'hydrogène dans plusieurs états rotationnels, et ce par l'intermédiaire de niveaux rovibrationnellement excités de l'état  $B^1\Sigma_u^+$ . Cependant le signal moléculaire est de loin le plus important et ne permet pas une mise en évidence d'un signal atomique.

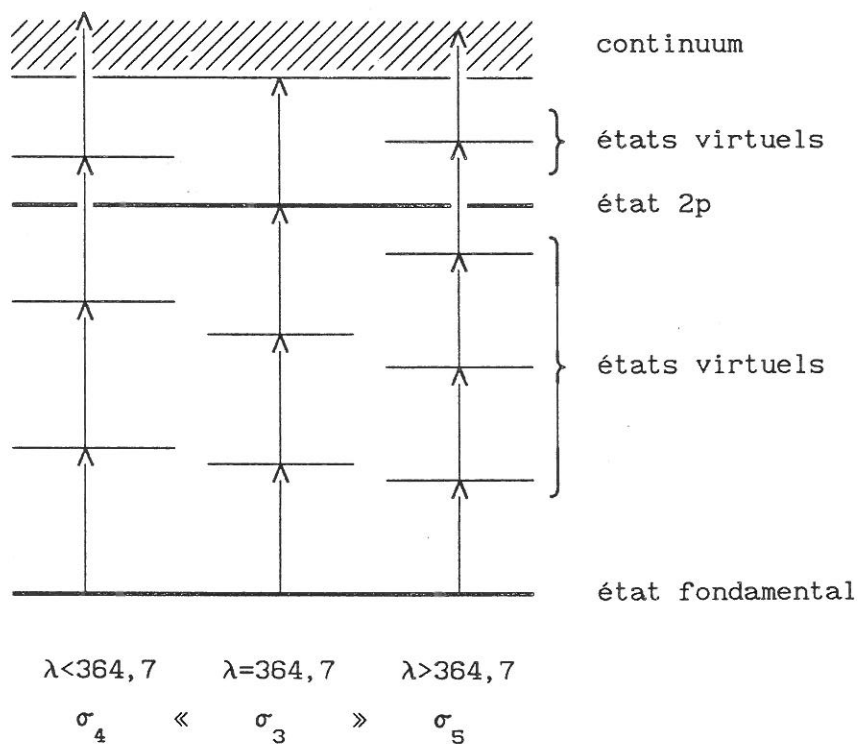
La détermination d'une température rotationnelle bien qu'imprécise, fournit des valeurs plausibles.

S'agissant de la détection de l'atome, des résultats intéressants devraient être fournis par des expériences menées à différentes distances de la décharge, en effet plus on est près de cette dernière, plus la densité atomique est grande; enfin au vue de ce qui suit il serait aussi très intéressant d'effectuer ces expériences avec des lentilles de différentes longueurs focales.

IV) EXPERIENCES A 364,7 nm.

i) Détection de l'atome.

Le signal moléculaire ne permettant pas dans les expériences précédentes de mettre en évidence un signal atomique, une autre série d'expériences a été conduite à une longueur d'onde différente. Cette longueur d'onde (364,7 nm) a été choisie de telle sorte que l'ionisation résonnante de l'état fondamental de la molécule ne soit pas possible. Elle conduit à une résonance avec l'état 2p et non plus 3d de l'atome, suivant le schéma reproduit ci-dessous:



Ce schéma rend parfaitement compte du signal présenté sur la figure (8). Il s'agit du signal optogalvanique enregistré lorsque la longueur d'onde associée à un photon émis par le laser varie de 364,3 à 365,1 nm environ, obtenu avec une lentille de longueur focale égale à 40 cm .

Lorsque la longueur d'onde est inférieure à la longueur d'onde de résonnance, l'atome ne peut être ionisé à partir de son état fondamental que par l'absorption de quatre photons, la section efficace est suffisamment faible pour qu'au flux considéré le signal soit nul.

A fortiori, lorsque la longueur d'onde est supérieure à la valeur de la résonnance le signal est nul aussi, l'atome ne pouvant être ionisé que par l'absorption de cinq photons.

Enfin, si les photons ont une longueur d'onde très proche de la longueur d'onde de résonnance, l'atome est cette fois ionisé en deux étapes:

- excitation du état 2p, par l'absorption (résonnante) de trois photons

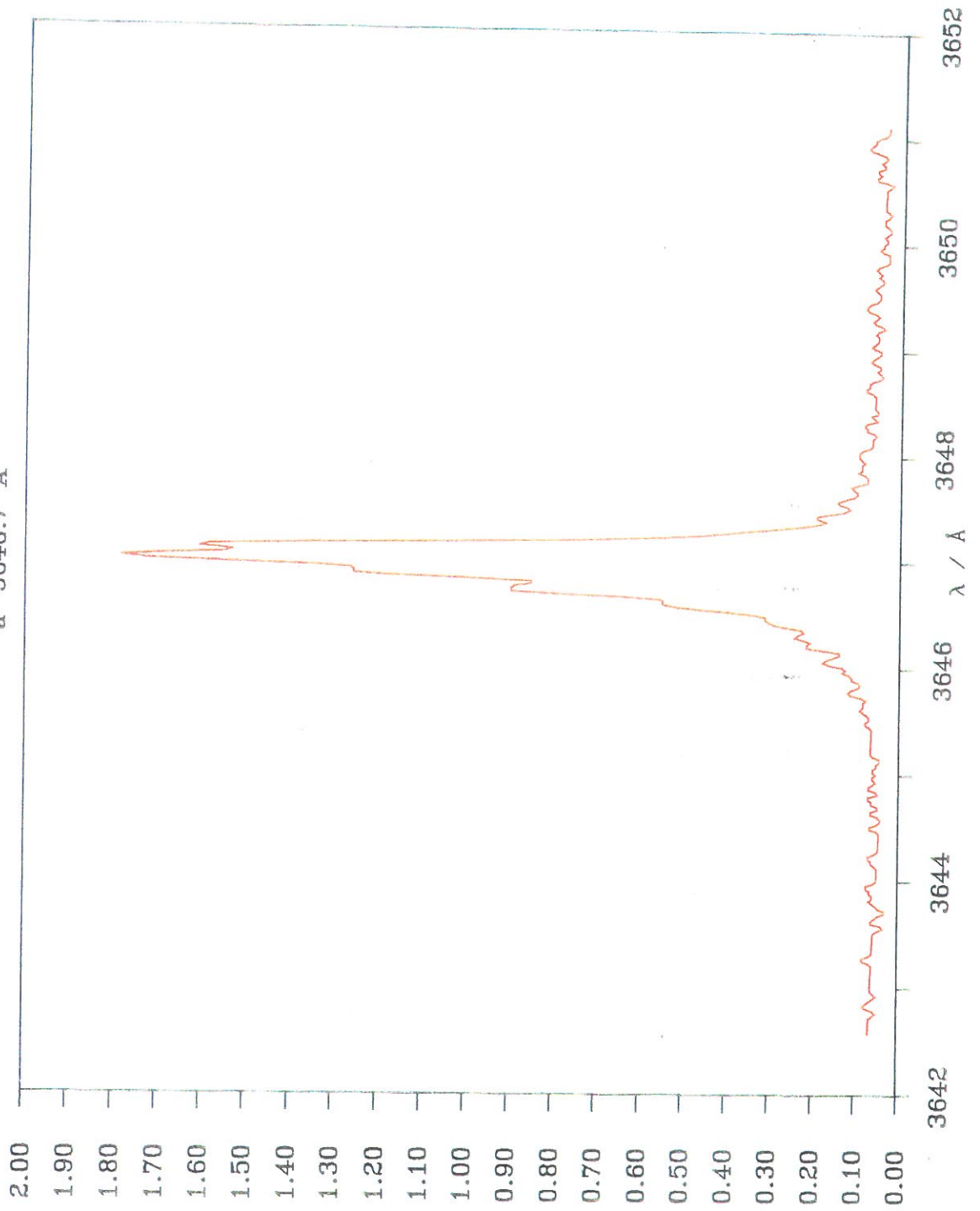
- puis ionisation de état 2p par l'absorption (également résonnante) d'un photon supplémentaire.

Ce processus est essentiellement gouverné par l'étape d'excitation, donc à trois photons, ce qui explique que la section efficace de ce phénomène (communément dénommé ionisation résonnante à 3+1 photons) soit plus grande que dans les deux cas évoqués précédemment, et donc que le signal apparaisse nettement.

La longueur d'onde à laquelle apparaît le signal, le fait que ce dernier disparaisse lorsque l'on coupe soit le laser, soit la décharge, ou encore lorsque la lentille de focalisation du faisceau est enlevée, confirme sans équivoque que le signal est bien dû à l'ionisation de l'atome suivant les processus exposés ci-dessus.

# Effet optogalvanique

à 3646.7 Å



Signal optogalvanique enregistré autour de 364.7 nm.

signal / mV

Figure n° 8

ii) Variations du signal avec la puissance laser.

D'un point de vue théorique: le nombre d'ions produits pendant un temps  $dt$ , dans un volume  $dV$  lors d'une expérience de multiphotoionisation à  $P$  photons est proportionnel à la densité de particules cibles  $n_0$ , à la section efficace d'ordre  $P$ , et au flux laser élevé à la puissance  $P$ :

$$dN^+ = n_0 \sigma_P \Phi^P \overline{P!} dV dt, \quad (1)$$

où:  $\overline{P!}$  est un facteur variant de 1 pour un laser monomode, à  $P!$  pour un laser multimode. Nous reviendrons plus tard sur ce facteur lié à la fonction de corrélation d'ordre  $P$  des photons.

En supposant  $n_0$  constant ( $N^+ \ll n_0$ ), l'équation (1), peut s'écrire:

$$N^+ = n_0 \sigma_P \Phi^P \overline{P!} V \tau \quad (1 \text{ bis})$$

où:  $V$  est le volume d'interaction et  $\tau$  la durée de l'impulsion laser.

Dès lors, la pente de la droite obtenue en traçant la courbe  $\text{Log}(N^+) = f[\text{Log}(\Phi)]$  doit être égale à l'ordre d'interaction, i.e. le nombre de photons absorbés simultanément, cette pente est souvent appelée ordre de nonlinéarité.

En fait dans la plupart des expériences la courbe obtenue n'est pas une droite, mais montre une saturation du nombre d'ions aux forts flux laser. Les pentes obtenues sont toujours plus faibles que l'ordre d'interaction.

Ces faits peuvent assez aisément s'expliquer. Pour simplifier, si l'on considère un volume d'interaction  $V$ , et que l'on suppose qu'à partir d'un certain flux toutes les particules sont ionisées, une augmentation du flux ne peut augmenter le nombre d'ions, la droite obtenue alors serait de pente 0 et non  $P$ . Ce phénomène est appelé effet de saturation, ou dépletion, tenir compte de cet effet revient à ne plus supposer  $n_0$  constant dans l'équation (1).

Si maintenant l'on tient compte du fait que le flux n'est pas constant dans le volume d'interaction, on est amené à supposer qu'au centre de ce volume par exemple, il peut se produire le même phénomène, et ce, même à basse valeur du flux laser, ce qui explique que les pentes obtenues sont inférieures à l'ordre d'interaction.

Enfin, la zone d'interaction n'est, elle non plus, pas constante, mais varie avec la puissance laser, les pentes obtenues même en régime de saturation, sont supérieures à 0, car le volume d'interaction augmente avec le flux.

La figure (9), qui représente l'évolution du signal collecté avec la puissance laser, est une illustration de ce qui précède. Elle a été obtenue avec une lentille de longueur focale égale à 20 cm, à une pression d'un Torr et un courant de décharge de 30 mA. Elle correspond à l'évolution avec l'intensité laser du maximum d'ions collectés, ces ions étant créés par un phénomène où l'étape "limitante" est l'excitation à trois photons.

Aux faibles valeurs de l'énergie laser, inférieures à 9.5 mJ, la pente de la droite ajustée au mieux aux points de mesure est d'environ 2,32, tandis qu'aux plus fortes valeurs cette pente est égale à 1,5. Kelleher et al [6 a) et b)] obtiennent dans une expérience similaire, une pente de 2.3, dans la gamme 1-10 mJ, donc en excellent accord avec nos résultats. Ces auteurs trouvent une pente de 3 aux valeurs de l'énergie laser inférieures à 1.5 mJ.

Notons que ces résultats sont obtenus au maximum du signal et donc à un  $\Delta E$  ( $\Delta E$  est le "detuning") non constant.

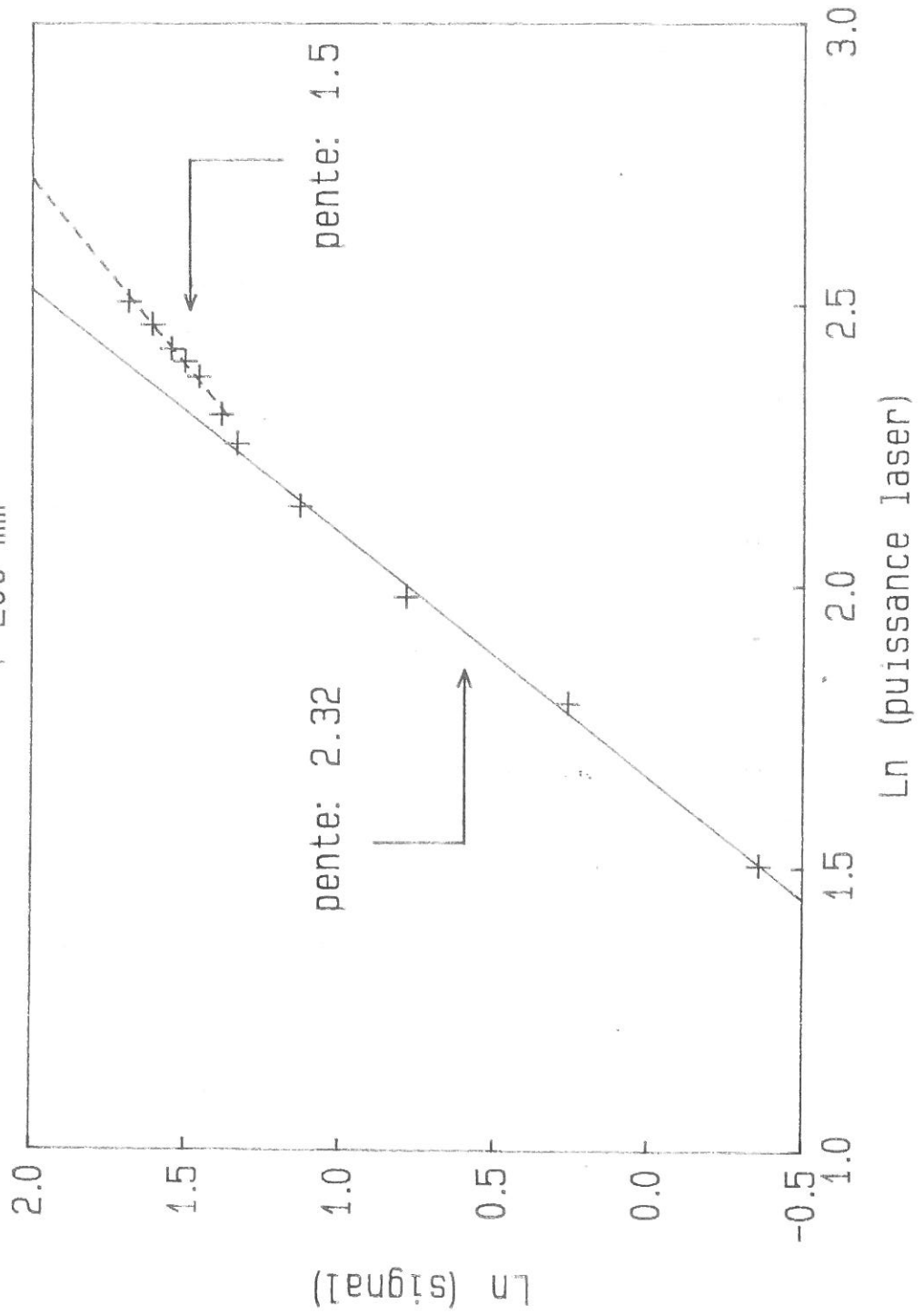
Gontier et al [6 c)] ont calculé la dépendance de la probabilité d'ionisation résonnante à quatre photons de l'hydrogène via le niveau 2p, en fonction de l'intensité laser à différents  $\Delta E$ . Ils montrent que dans la partie linéaire des courbes obtenues, la pente des droites en coordonnées Log-Log, varie (à  $\Delta E$  constant) en fonction de l'intensité. Pour  $\Delta E = 0.1 \text{ cm}^{-1}$ , la pente est d'environ 2.

iii) Variations du signal avec la longueur focale.

Des expériences menées avec des lentilles de différentes longueurs focales sont présentées sur la figure (10).

Notons tout d'abord que, comme nous le verrons plus en détail dans

Effets de la puissance Laser  
f=200 mm



Evolution du signal avec la puissance laser

P=1 torr,  $I_d=65$  mA, F= 20 cm

Figure n° 9

le chapitre suivant, la densité de flux laser (puissance/surface) est fonction de l'inverse du carré de la longueur focale, il y a donc un facteur cent entre des focales de 5 et 50 cm; d'autre part le volume d'interaction varie en fonction de la focale élevée à la puissance 4 (cf chap I d) de la partie théorique).

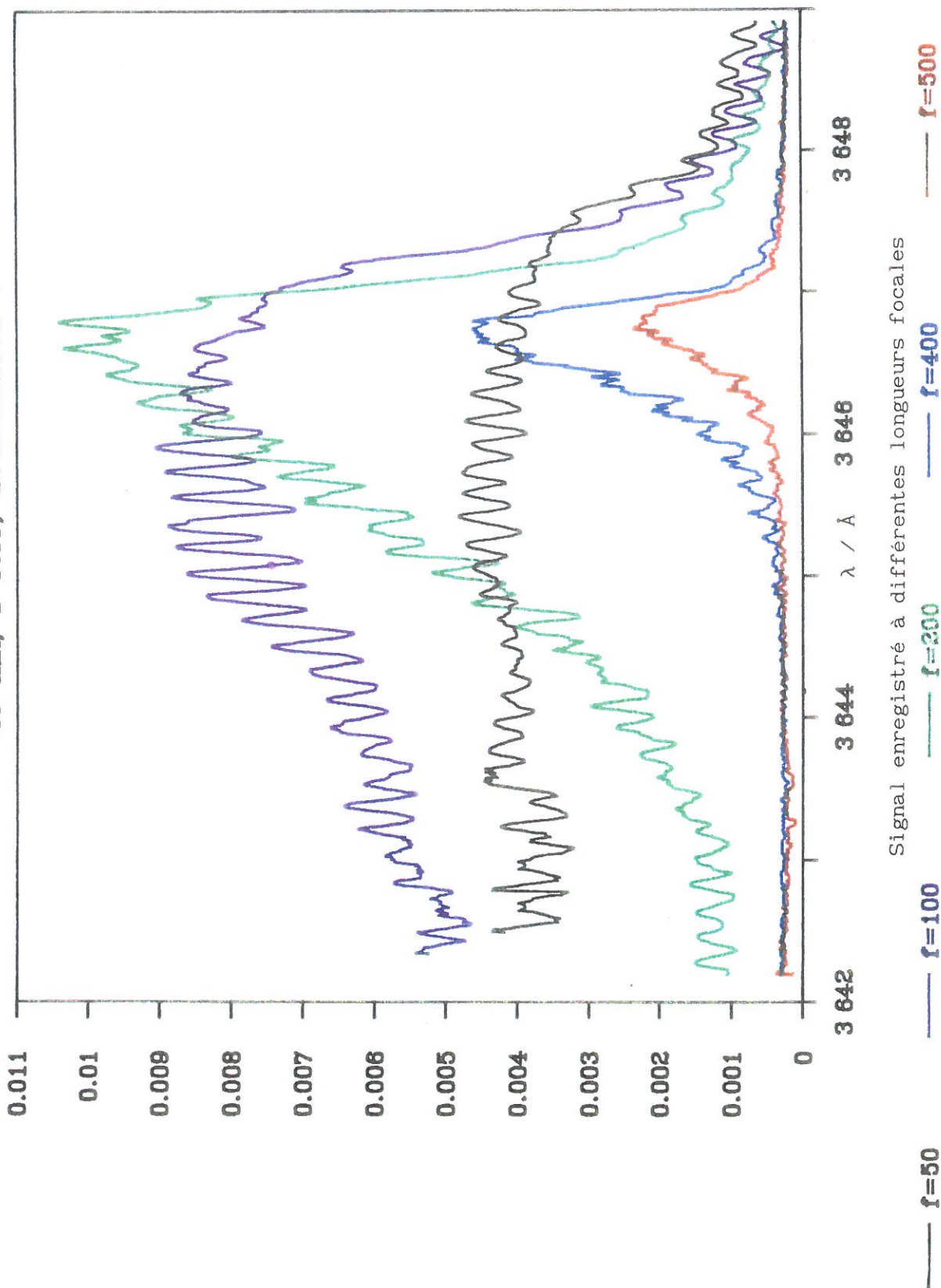
Les courbes de la figure (10) montrent des profils très différents suivant la longueur focale et donc le flux laser. Certaines caractéristiques sont constantes: les raies obtenues sont fortement asymétriques : toutes présentent une aile bleue bruyante, d'autant plus prononcée que la focale est courte, d'autre part la largeur de ces signaux est grande devant les largeurs résultantes d'effets radiatifs, collisionnels ou Doppler. La figure (11) montre les largeurs à mi hauteur des raies en fonction de l'intensité laser, leur évolution est proche d'un comportement linéaire. Notons que la largeur de la raie obtenue avec une longueur focale de 10 cm résulte d'une extrapolation aux faibles longueurs d'onde, (la courbe correspondant à une focale de 5 cm n'a pas fait l'objet d'une telle extrapolation dont le résultat eût été pour le moins imprécis, sa largeur n'est donc pas reportée sur la figure).

L'ensemble de ces faits est en bon accord avec les résultats obtenus dans une expérience similaire par Kelleher et al [6 a) et b ]. Ces auteurs développent un modèle, basé sur les résultats de Zoller [ 7 ], qui reproduit les profils expérimentaux en tenant compte, dans l'expression et l'intégration du taux d'ionisation en fonction de la fréquence, de fluctuations aléatoires de la distribution spatiotemporelle de l'intensité laser au cours d'un tir. Ces fluctuations autour de l'intensité moyenne , qui sont dues à des phénomènes de battements entre les différents modes longitudinaux du laser, conduisent à des sur-intensités qui ont pour effet d'élargir et de rendre asymétriques les profils d'ionisation (via l'effet Stark) . Ces sur-intensités conduisent, dans les calculs de Kelleher, à des pics de puissance cinq fois plus élevés que la puissance moyenne.



# VARIATIONS DU SIGNAL AVEC LA FOCALÉ

65 mA, 1 Torr, détection: 100 V

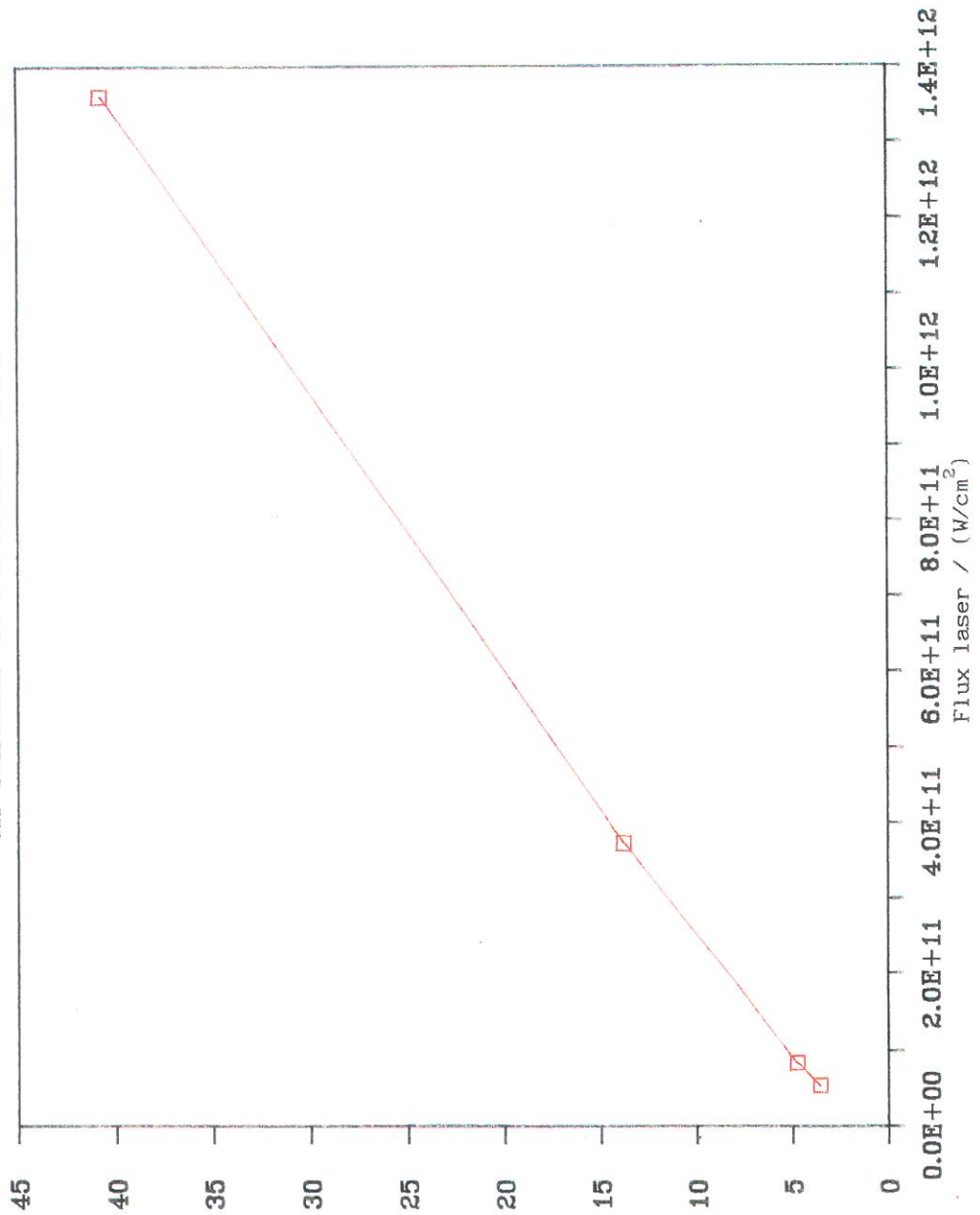


signal / V

Figure n° 10



# Largeur à mi-Hauteur du signal en fonction de l'intensité laser



Evolution de la largeur à mi-hauteur du signal en fonction de la puissance laser

Largeur à mi-hauteur / cm-1

Figure n° 11



Ce modèle rend compte de façon satisfaisante des profils obtenus par ces auteurs, à un léger décalage en énergie près, i.e: le calcul effectué avec une énergie laser de 5,8 mJ reproduit très bien le profil expérimental obtenu avec une énergie de 7,1 mJ; autrement dit, l'élargissement expérimental est moins important que celui prévu par le modèle. Dans l'expérience de Kelleher, une énergie laser de 5,8 mJ correspond à une densité de puissance (moyennée sur les "battements") d'environ  $2 \cdot 10^{10} \text{ W/cm}^2$ .

La figure (12) montre une comparaison entre nos résultats et ceux de Kelleher. Le profil expérimental de Kelleher, obtenu à  $2,3 \cdot 10^{10} \text{ W/cm}^2$  ( et bien reproduit par les calculs à  $1,8 \cdot 10^{10} \text{ W/cm}^2$ ) a été normalisé au maximum du profil obtenu dans notre expérience avec une focale de 40 cm, qui correspond à une densité de puissance maximum égale à  $5 \cdot 10^{10} \text{ W/cm}^2$ . En outre l'axe des abscisses a été transformé pour coïncider avec le nôtre, en effet, les résultats de Kelleher sont exprimés en fonction du "detuning"  $\Delta$  d'un photon ( $\Delta = \omega - \omega_0/3$ , où  $\omega_0 = 27419,7 \text{ cm}^{-1}$ ), les nôtres le sont en fonction de la longueur d'onde. Il faut noter ici que le décalage en longueur d'onde n'a pu être mesuré précisément dans nos expériences, il ne sera donc pas discuté plus avant.

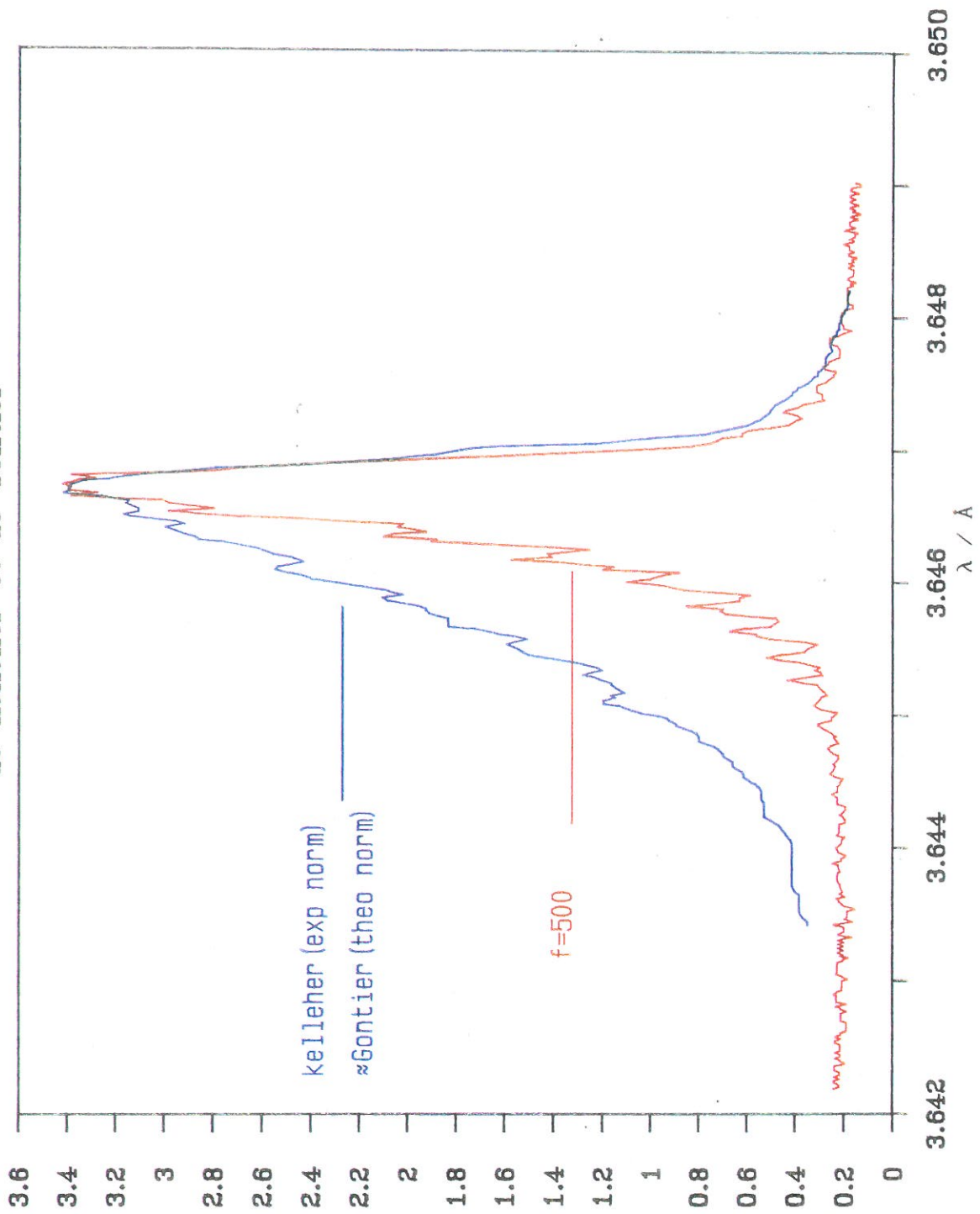
Les résultats présentés sont en très bon accord quant à la forme générale, cependant le profil de Kelleher est sensiblement plus large que le nôtre. Ceci peut s'expliquer par la différence du nombre de modes entre le laser utilisé par Kelleher et le nôtre.

Kelleher et al se sont livré à une étude approfondie de l'évolution temporelle de l'intensité au cours d'un tir de leur laser, étude qu'il n'a pas été possible d'effectuer dans notre cas. En particulier, ils montrent que le nombre de modes de leur laser est de treize, à comparer à cinq environ pour le nôtre.

Or les résultats de Kelleher ont aussi été étudiés très en détail par Y.Gontier et al [6 c] qui ont appliqué leur modèle ( décrit

# COMPARAISON AVEC LES RESULTATS

de Kelleher et de Gontier



Comparison des profils enregistrés à  $f=50$  cm avec les profils de Kelleher et de Gontier. Les profils sont normés au maximum du signal, Les résultats de Gontier et de Kelleher se confondent.

signal / U.A

Figure n° 12

dans [6 d]) à cette expérience. Notons d'une part que ce modèle reproduit très bien les résultats de Kelleher lorsque les calculs sont effectués avec une énergie laser de 7,1 mJ (i.e la valeur expérimentale) et qu'est prise en compte la nature multimode du laser : les profils obtenus, une fois normalisés, se recouvrent parfaitement.

D'autre part, ces auteurs ont aussi étudié les modifications apportées aux profils lorsque la lumière peut être considérée comme chaotique. Ils montrent que la largeur à mi-hauteur du signal du à la REMPI, est multipliée par environ 2.5 , lorsque l'on passe d'un nombre de modes de un à vingt (pour une puissance moyenne de  $3 \cdot 10^{10} \text{ W/cm}^2$ ). Cet accroissement de la largeur à mi-hauteur est en outre une fonction croissante de l'intensité. On peut donc considérer que les profils obtenus ici avec des focales "longues", sont bien décrits par le modèle de Gontier et Trahin.

Cependant, il faut noter que l'ionisation non-résonnante à quatre photons n'est pas prise en compte dans ces calculs, les profils de la figure (12) peuvent être le résultat de phénomènes décrits par le modèle de Kelleher (ou par celui de Gontier) mais dans lequel interviendrait l'ionisation non résonnante, surtout aux longueurs focales courtes.

#### a) Normalisation

Avant d'aller plus loin dans l'interprétation de ces courbes, il convient de les normaliser, plus précisément de ramener les résultats à un flux laser constant par nombre d'atomes éclairés constant: lorsque la focale augmente de  $f$  à  $f'$ , le flux est diminué d'un facteur  $(f'/f)^2$ , tandis que le nombre d'atomes éclairés augmente, en supposant la densité constante spatialement, comme le volume, d'un facteur  $(f'/f)^4$  (pour la variation de volume cf la partie théorique) . La normalisation a donc été effectuée, en prenant pour base  $f=200$ , en multipliant le signal par  $(200/f')^2$ :

$$\text{signal} \times \frac{\left(\frac{f'}{200}\right)^2}{\left(\frac{f'}{200}\right)^4} = \text{signal} \times \left(\frac{200}{f'}\right)^2 \quad (2)$$

Les résultats sont donnés sur la figure (13) et pour, plus de lisibilité, en représentation semi-logarithmique sur la fig (14).

#### b) Interprétation

A la plus grande des longueurs focales utilisée, 50 cm, le signal est semblable à celui donné fig (9), le signal est tout d'abord nul aux longueurs d'ondes faibles, passe par un maximum net à la longueur d'onde de résonance, puis retombe à zéro aux longueurs d'ondes plus grandes. L'interprétation de ce comportement a déjà été donnée (cf i) ).

Par contre, à la longueur focale la plus courte, 5 cm , qui correspond donc à une valeur de la densité de flux cent fois plus grande que précédemment, le signal n'est pas nul aux longueurs d'onde inférieures à 364,67 nm, il ne passe plus non plus par un maximum marqué, mais chute lorsque la longueur de résonance est dépassée.

L'explication proposée s'appuie toujours sur le schéma de principe de l'ionisation à (3+1) photons. A cette focale, 5 cm, le flux est suffisamment grand pour ioniser de façon non résonnante l'atome à quatre photons, ( éventuellement par l'intermédiaire de phénomènes analogues aux battements décrits par Kelleher) le signal aux longueurs d'ondes inférieures à celle de résonance n'est donc pas nul; le flux peut même être suffisant pour ioniser de cette façon quasiment tous les atomes présents dans le volume d'interaction, dans cette hypothèse il ne peut donc y avoir une augmentation nette du signal à la résonance; enfin, aux longueurs d'onde



### VARIATIONS DU SIGNAL AVEC LA FOCALE

65 mA, 1 Torr, détection:100 V

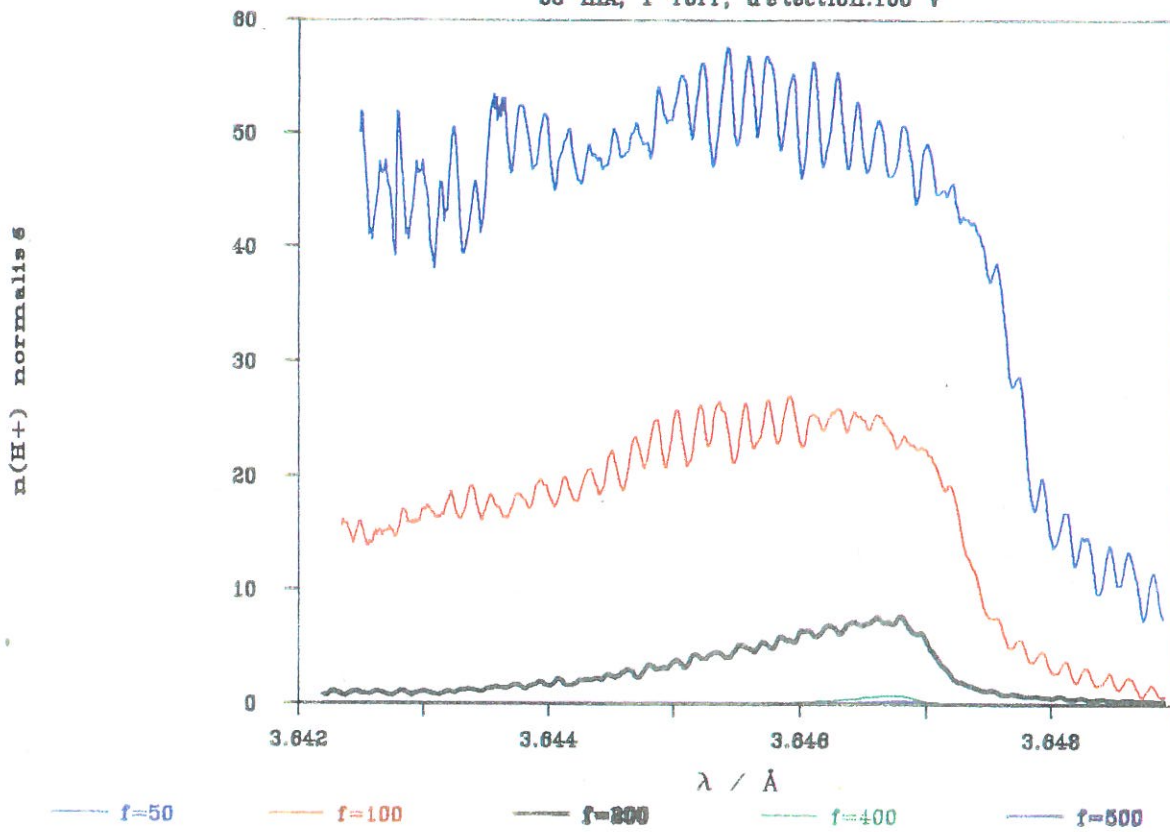


Figure n° 13

### VARIATIONS DU SIGNAL AVEC LA FOCALE

65 mA, 1 Torr, détection:100 V

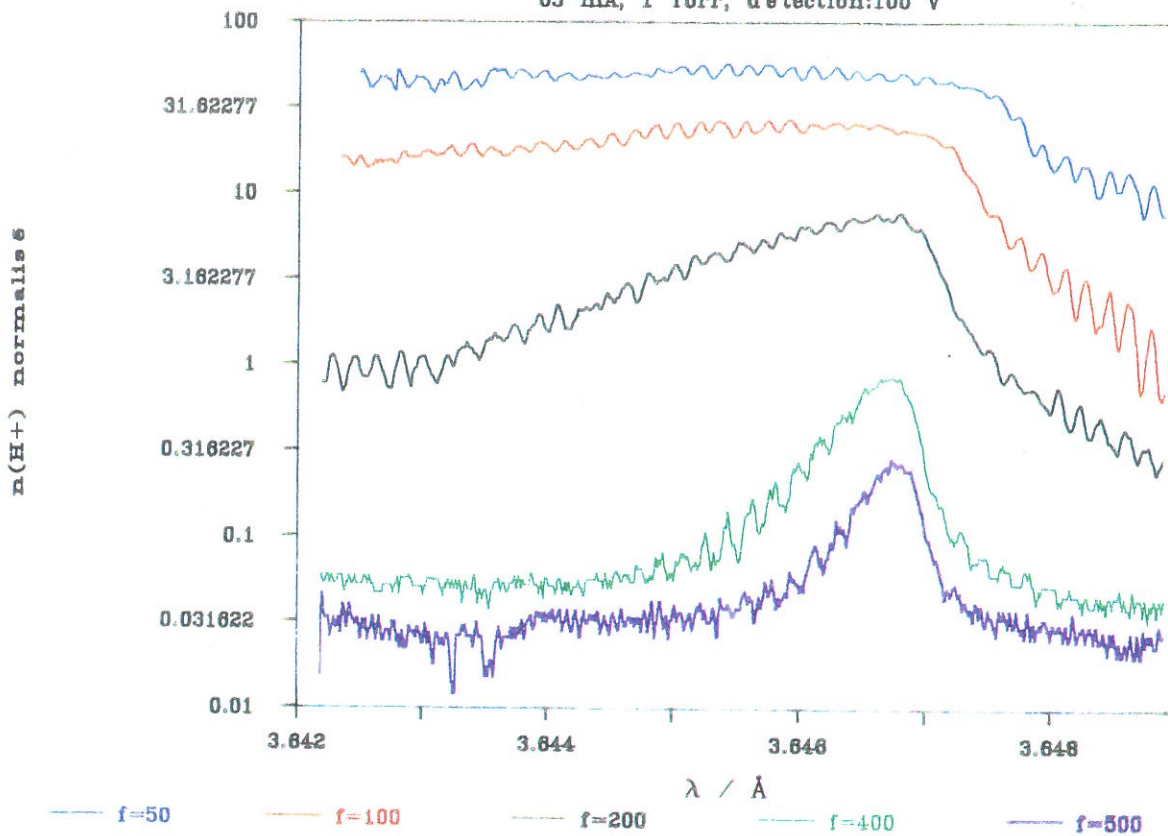


Figure n° 14

supérieures à la valeur de résonnance, l'ionisation ne peut être obtenue que par un effet à cinq photons, le flux nécessaire pour ioniser un grand nombre d'atomes est alors beaucoup plus important; si cette valeur du flux n'est pas atteinte le signal retombe alors à zéro.

Les courbes obtenues avec des focales comprises entre ces deux valeurs extrêmes, et donc avec des valeurs de flux "moyennes" montrent des comportements intermédiaires.

#### c) Autre normalisation

D'après l'équation (1) qui est rappelé ci-après, appliquée au cas à trois photons:

$$dN^+ = n_0 \sigma_3 \Phi^3 3! dV dt \quad (1)$$

on pourrait penser à tenir compte du fait que le nombre d'ions dépend du cube de la puissance laser, en effectuant la normalisation précédemment utilisée. Ceci revient, dans ce cas, à multiplier le signal par  $(f'/200)^2$ .

Les résultats de cette normalisation sont donnés sur la figure (15).

#### iv) Conclusion

Dans ce chapitre, il a été mis en évidence un signal dû à l'ionisation multiphotonique de l'atome d'hydrogène à partir de son état fondamental. Les profils obtenus sont bien expliqués par les théories prenant en compte dans l'effet Stark la nature multimode du laser. Une étude de la variation du signal en fonction de la longueur focale, et donc du flux laser, a montré qu'il était possible d'interpréter les résultats obtenus en fonction de la longueur d'onde, en termes d'ionisation non-résonnante à quatre et cinq photons, de part et d'autre de l'ionisation résonnante à (3 + 1) photons. L'essentiel de ce travail a fait l'objet d'une publication [ 8 ].

# VARIATIONS DU SIGNAL AVEC LA FOCALLE

65 mA, 1 Torr, détection:100 V

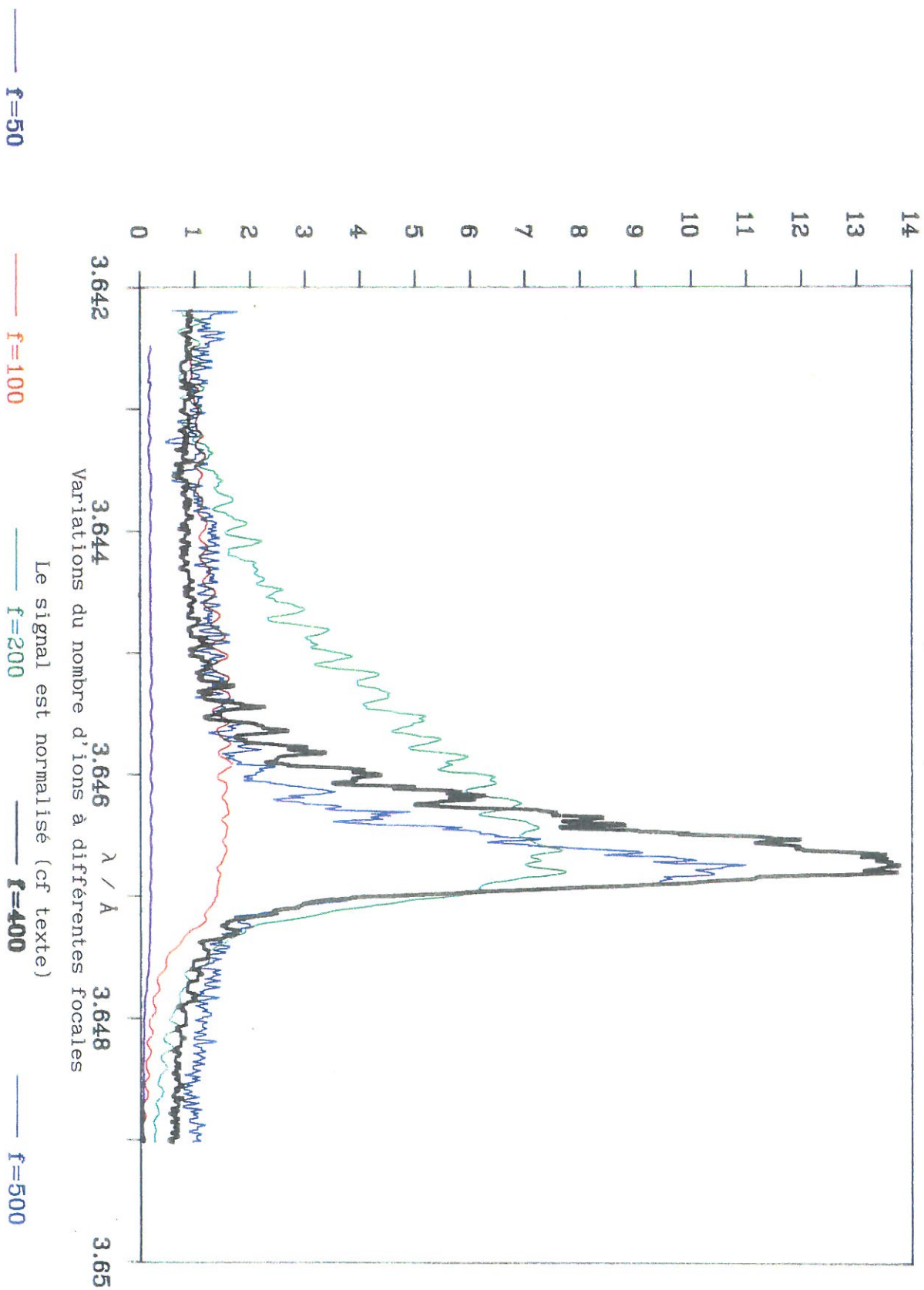


Figure n° 15



PARTIE  
THEORIQUE

## I) MODELE THEORIQUE

Les bases de ce modèle ont été développées par G.Baravian et G.Sultan [9].

### a) Caustiques

La focalisation d'un faisceau laser peut être décrite par différentes géométries en relation avec les formes des lentilles utilisées: forme en double cône pour des lentilles sphériques, en double "coin" pour des lentilles cylindriques, etc. D'autres modèles peuvent être utilisés: deux troncs de cônes reliés par leur petite section [ 10 ] où encore deux troncs de cônes reliés par un cylindre [ 11 ].

Nous utiliserons ici, comme le fait Hanazaki [12], une géométrie légèrement différente à symétrie cylindrique dans laquelle les photons suivent des trajectoires hyperboliques dans un plan contenant l'axe de propagation de la lumière (axe z). Cette géométrie est illustrée sur la figure (16). Elle est en accord avec les mesures de Baravian [ 13 ], qui montrent que les sections du faisceau focalisé sont des cercles dont les rayons suivent la loi supposée ici. Le point focal se situe à  $z=0$ ;  $r$  étant la distance à l'axe optique, l'équation d'une caustique peut s'écrire :

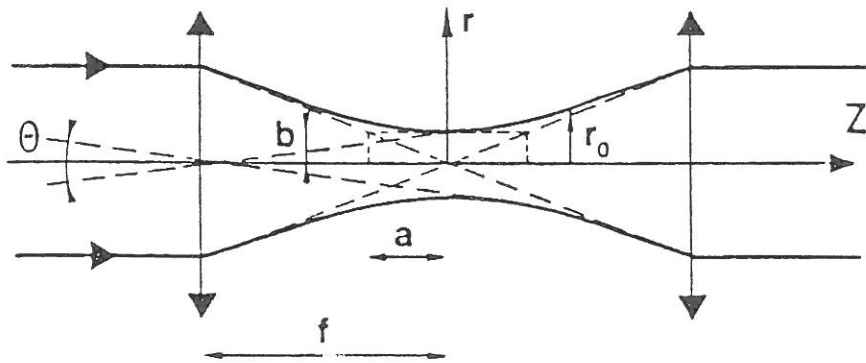
$$(r/b)^2 - (z/a)^2 = 1, \quad (1)$$

où :  $b = f\theta/2$  ,  $f$  étant la longueur focale et  $\theta$  la divergence du faisceau laser  
et  $a = f^2\theta/D$  ,  $D$  étant le diamètre du faisceau avant focalisation.

On considère généralement que le rayon du faisceau au point focal est relié au rayon du faisceau avant focalisation,  $(D/2)$ , par la formule de la diffraction :

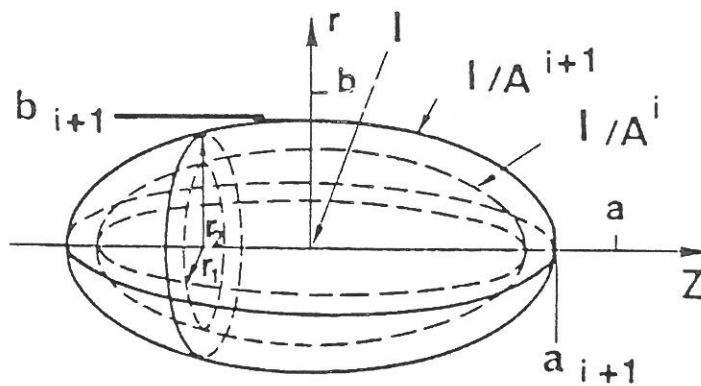
$$r = \frac{f \varepsilon}{2} \text{ avec } \varepsilon = \frac{1.22 \lambda}{D} . \quad (2)$$

Dans notre cas la longueur d'onde utilisée  $\lambda = 364,7$  nm, le



geometrie de focalisation

Figure n° 16



geometrie des isophotes

Figure n° 17

diamètre du faisceau  $D = 0,4$  cm et donc  $\varepsilon = 1,1 \cdot 10^{-4}$  rd, nous utiliserons donc la valeur de la divergence  $\theta \approx 10^{-3}$  rd qui est supérieure à  $\varepsilon$ . Il est cependant très simple d'appliquer ce modèle au cas où  $\varepsilon$  est supérieur à  $\theta$ , puisqu'il suffit de remplacer  $\theta$  par  $\varepsilon$ .

#### b) Faisceau laser

Si l'on suppose une distribution gaussienne de la densité d'énergie du faisceau aussi bien spatialement que temporellement, la densité d'énergie dans la région focale peut être écrite:

$$I(r, z, t) = I \left[ \frac{S_0}{S_z} \right] \exp \left[ -\delta \left( \frac{r}{r_0} \right)^2 - \left( \frac{t - t_0}{\tau} \right)^2 \right], \quad (3)$$

où :  $I$  est la valeur maximum de la densité de puissance, qui est atteinte à  $t=t_0$  pour  $r=0$  et  $z=0$ ;

$r_0$  est le rayon du cercle défini par l'intersection de la caustique définie par l'équation (1) avec n'importe quel plan perpendiculaire à l'axe  $z$ ;

$\delta$  est un paramètre relié à la largeur de la gaussienne radiale du faisceau;

$S_0 = \pi b^2$  et  $S_z = \pi r_0^2$  sont les surfaces des sections des caustiques à  $z=0$  et  $z$ , respectivement;

$\tau$  est la largeur à  $1/e$  de la gaussienne temporelle .

Pour plus de réalisme, il serait utile d'effectuer une analyse densitométrique de la distribution radiale d'énergie telle que l'on faite Lompré et al [ 14 ]. Ce moyen n'était cependant pas à notre disposition.

Il faut aussi noter que le nombre total de photons qui traversent tout plan perpendiculaire à l'axe de propagation a été supposé constant; autrement dit l'énergie est constante pendant un tir laser. Cette hypothèse semble totalement justifiée eu égard au très faible nombre relatif de photons absorbés lors d'un phénomène



de multiphotoionisation; par exemple pour des photons d'énergie égale à 3 eV, et un nombre d'ions, créés par absorption de 3 photons par particule, égal à  $10^7$ , l'énergie totale absorbée est de l'ordre de  $10^{-11}$  Joules, à comparer à l'énergie émise pendant un tir laser égale à quelques millijoules.

c) Isophotes

Il est possible de déterminer à partir de (2) l'équation de surfaces isophotes, c'est à dire l'équation de surfaces où l'intensité est constante. Ces surfaces ont été étudiées en détail par Morgan [ 15 ], qui montre une complexité très grande de la distribution d'intensité même dans le cas le plus simple. Un modèle simplifié sera utilisé ici.

Soit une surface isophote correspondant à une densité de puissance:

$$I_{\alpha}(r,z,t) = I(t)/\alpha , \quad (4)$$

où: 
$$I(t) = I \exp \left[ - \left[ (t-t_0)/\tau \right]^2 \right] \quad (4 \text{ bis})$$

et  $\alpha$  est un facteur d'atténuation arbitraire.

Nous poserons comme hypothèse que la densité de puissance décroît d'un facteur  $A=1+\varepsilon$ , où  $\varepsilon$  est petit, d'une isophote à l'isophote immédiatement "supérieure"; ainsi à l'isophote d'ordre  $i$  correspond un facteur d'atténuation  $\alpha = A^i$ .

L'équation d'une isophote peut s'écrire:

$$\frac{r^2}{b^2} = \frac{1}{\delta} \left[ \frac{z^2}{a^2} + 1 \right] \text{Ln} \left[ \frac{\alpha a^2}{z^2 + a^2} \right]. \quad (5)$$

Cette équation définit des surfaces "quasi-ellipsoïdales", cf figure (17), de demi-axes longitudinal et transverse égaux respectivement à :

$$a_i = a \sqrt{\alpha - 1} \quad \text{et} \quad b_i = b \sqrt{\ln(\alpha)/\delta} . \quad (6)$$

d) Volume élémentaire d'interaction

Nous pouvons dès lors évaluer le volume élémentaire d'interaction  $dV_i$ , c'est à dire la différence de volume entre deux isophotes consécutives, ce qui correspond à une région où toutes les particules sont soumises sensiblement au même flux.

Le volume borné par une surface isophote est donné par :

$$V_i = 2\pi \int_0^{a_i} r^2 dz$$

$$= \frac{4\pi ab^2}{9\delta} \left[ (\alpha + 5) \sqrt{\alpha - 1} - 6 \arctan \sqrt{\alpha - 1} \right] \quad (7)$$

et

$$dV_i = V_i - V_{i+1} = \frac{V_0}{\delta} \left[ \chi_{i+1} - \chi_i \right] \quad (8)$$

où :

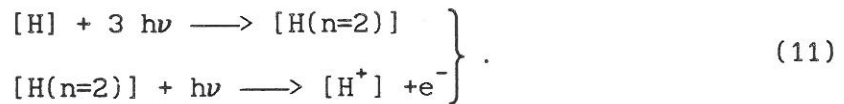
$$V_0 = \frac{4\pi ab^2}{3} \quad (9)$$

et :

$$\chi_i = \frac{A^i + 5}{3} \sqrt{A^i - 1} - 2 \arctan \sqrt{A^i - 1} \quad (10)$$

e) Termes sources

Nous considérons ici l'ionisation consécutive à l'excitation multiphotonique par trois photons du niveau  $n=2$  suivie de l'absorption d'un photon supplémentaire : soient les réactions:



A chaque instant le nombre d'états excités créés dans le volume  $dV$  pendant l'intervalle de temps  $dt$  peut s'écrire:

$$d^2N^* = n_0(r, z, t) \sigma_3 I^{-3} \frac{1}{3!} dV dt \quad (12)$$

où :

$n_0(r, z, t)$  est la densité d'atomes dans l'état fondamental, fonction de  $t$  et de  $(r, z)$

$\sigma_3$  est la section efficace d'excitation

$\overline{3!}$  représente la fonction de corrélation des photons, qui dépend du nombre de modes du laser, elle sera discutée plus en détail par la suite.

Le nombre d'états excités créés dans le volume  $dV_i$  est alors :

$$d^2N^* = n_0(r, z, t) \sigma_3 \langle I_i^3 \rangle \overline{3!} dV_i dt \quad (13)$$

où  $\langle I_i^3 \rangle$  représente la valeur moyenne du flux dans le volume  $dV_i$  élevé à la puissance 3. Cette valeur, comprise entre  $I(t)/A^{i+1}$  et  $I(t)/A^i$  est calculée en considérant un plan perpendiculaire à l'axe  $z$  qui détermine avec les isophotes d'ordre  $i$  et  $i+1$ , deux sections  $S_1$  et  $S_2$  de rayon respectif  $r_1$  et  $r_2$  (cf figure (17)).

$$\langle I_i^3 \rangle = \frac{1}{S_2 - S_1} \int_{r_1}^{r_2} [I(r, z, t)]^3 2\pi r dr \quad (14)$$

soit après intégration:

$$\langle I_i^3 \rangle = I^3(t) \frac{1}{3A^{i3} \text{Ln } A} \left[ 1 - \frac{1}{A^3} \right] \quad (15)$$

donc d'après (8) et (9), et avec  $\overline{3!} = 3!$  (cf plus loin):

$$d^2N^* = n_0(r, z, t) \sigma_3 2! I^3 \exp \left[ -3 \left( \frac{t - t_0}{\tau} \right)^2 \right] \times \frac{1}{A^{i3} \text{Ln } A} \left[ 1 - \frac{1}{A^3} \right] dV_i dt \quad (16)$$

Nous supposons qu'à l'intérieur de  $dV_i$  la densité d'atomes est constante spatialement, et nous l'écrivons  $n_0(i, t)$ ;  $n_0(i, t)dV_i = N_0$  est alors égal au nombre d'atomes dans l'état fondamental à l'instant  $t$ . L'équation (16) peut s'écrire:

$$\left. \frac{dN^*}{dt} \right|_c = N_0 \sigma_3 \Phi_3 \quad (16 \text{ bis})$$

De même façon le nombre d'ions créés est donné par:

$$d^2N^+ = n^*(i,t)\sigma_1 I \exp\left[-\left(\frac{t-t_0}{\tau}\right)^2\right] \frac{1}{A^i \text{Ln } A} \left[1 - \frac{1}{A}\right] dV_i dt \quad (17)$$

dans laquelle  $n^*(i,t)$  est la densité d'états excités;

$n^*(i,t)dV = N^*$  est le nombre d'atomes dans l'état excité.

$\sigma_1$  est la section efficace de photoionisation de l'état  $n=2$

L'équation (17) peut s'écrire:

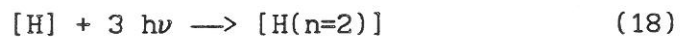
$$\left. \frac{dN^+}{dt} \right|_c = N^* \sigma_1 \Phi_1 \quad (17 \text{ bis})$$

#### f) Equations cinétiques

Pour connaître le nombre d'ions créés lors de l'interaction entre le laser et le gaz il faudrait tenir compte d'un grand nombre de processus de création et de perte tels que la recombinaison spontanée ou induite, l'ionisation multiple multiphotonique, l'ionisation en cascade par bremsstrahlung inverse, l'émission spontanée ou induite. Ces processus ont été discutés en détail par Drawin [ 16 ] à l'équilibre, dans le cas qui nous intéresse ici, les phénomènes ont lieu dans une situation fortement hors équilibre.

Nous ne retiendrons que les réactions suivantes dans chaque  $dV_i$ :

-excitation multiphotonique:



-ionisation:



-émission induite



-émission spontanée



Soient les équations cinétiques :

$$\begin{aligned} \frac{dN_0}{dt} &= - N_0 \sigma_3 \Phi_3 + N^*/l_t + N^* \sigma_3 \Phi_3 \\ \frac{dN^*}{dt} &= N_0 \sigma_3 \Phi_3 - N^* \sigma_1 \Phi_1 - N^*/l_t - N^* \sigma_3 \Phi_3 \\ \frac{dN^+}{dt} &= N^* \sigma_1 \Phi_1, \end{aligned} \quad (18)$$

dans lesquelles  $l_t$  est la durée de vie de l'état  $n=2$ .

Une intégration sur le temps et le volume fournit le nombre total de particules créées lors d'un tir laser.

Il faut cependant noter que dans l'équation (10), la densité de particules dans l'état fondamental,  $n_0$ , n'est pas constante, ni spatialement, ni temporellement: à un instant  $t$ , cette densité décroît de sa valeur initiale loin du point focal jusqu'à une valeur qui peut être proche de zéro (lorsque tel est le cas on parle de saturation ou de dépletion) au voisinage immédiat du centre du volume d'interaction.

En outre le volume d'interaction, défini comme le volume à l'intérieur duquel des particules sont créées, n'est pas constant, mais varie avec le flux laser.

De nombreux théoriciens ont calculé la valeur asymptotique de la pente des droites (en échelle logarithmique) rendant compte de l'évolution du nombre de particules créées en fonction de l'énergie laser. Ils obtiennent, en régime de saturation, une valeur de  $3/2$  ou  $2$ , quel que soit l'ordre d'interaction, suivant les différents types de lentilles ( Arutyunyan et al [17 a], Speiser et al [11 a], Cervenán [17 b], Fuss et al [17 c], Speiser et al [17 d], Hanazaki [12]).

#### g) Paramètres

Nous résumons ici les principaux paramètres intervenants dans les

équations précédentes.

$l_t$  est la durée de vie radiative de l'état  $n=2$  (2p) de l'atome d'hydrogène, elle est égale à  $2,13 \cdot 10^{-9}$  s [18]. (Cette valeur n'a d'ailleurs que peu d'influence sur les résultats, eu égard à la grande valeur de  $\sigma_1$ ).

$\theta$  est la divergence du faisceau. Le constructeur donne une divergence du faisceau pompe  $< 5 \cdot 10^{-4}$  rad, cependant des mesures effectuées sur le faisceau ultraviolet donnent une valeur d'environ  $10^{-3}$  rad. Il faut noter qu'il n'est pas impossible que le mécanisme de "suivi", qui assure l'optimisation de l'énergie en fonction de la longueur d'onde influe sur cette valeur; dans ce cas il est possible que la divergence fluctue au cours d'une expérience. Les calculs ont été effectués avec  $\theta = 9 \cdot 10^{-4}$  rad.

$\tau$  est la largeur à mi-hauteur de l'impulsion laser, les calculs ont été effectués avec  $\tau = 7 \cdot 10^{-9}$  s.

A est le facteur dont décroît la densité de puissance d'une isophote à l'autre. Plus A est proche de 1 (par valeurs supérieures) plus le calcul est précis mais plus le nombre de couches à prendre en compte est grand et plus les temps de calcul sont grands. Le résultat final n'est que très peu influencé par le choix de A, à condition qu'il soit pris assez proche de 1. Les calculs ont été effectués avec  $A = 1.01$ .

$N_m$  est le nombre d'isophotes prises en compte dans le calcul. Ce nombre n'est pas à proprement parler un paramètre du calcul, il convient simplement de prendre en compte suffisamment de coquilles pour "compter" tous les ions créés. Il faut noter que le volume d'interaction n'est pas borné. Si l'on définit ce volume comme celui limité par la surface de la coquille dans laquelle le nombre d'ions créés devient inférieur à 1, il est clair que ce volume dépend d'un certain nombre de paramètres tels

que: les sections efficaces introduites dans le calcul, le coefficient A et, en particulier, le flux laser, qui lui même dépend de la focale, de la divergence, de la forme de l'impulsion laser et varie dans le temps et dans l'espace. Il est donc difficile de parler d'un volume d'interaction. Les calculs ont été effectués avec des valeurs typiques de Nm comprises entre 300 et 600, ajustées pour chaque calcul.

I est la valeur maximum de la densité de flux en Watt/cm<sup>2</sup>. Elle est calculée à partir de la valeur E en Joules mesurée par le joulemètre. Soit I<sub>m</sub> la valeur moyenne sur le temps et la section du faisceau laser obtenue par:

$$I_m = \frac{E}{\tau S_0} = \frac{4 E}{\tau \pi (f \theta)^2} \quad (19)$$

En fait l'énergie E est mesurée après la traversée d'une lentille et d'un hublot qui introduisent des pertes estimées à 10 pour cent (deux fois quatre pour cent aux interfaces avec la lentille et une légère perte due au hublot ); la formule retenue de calcul de I<sub>m</sub> est donc :

$$I = \frac{E}{\tau S_0} = \frac{4,4 E}{\tau \pi (f \theta)^2} \quad (20)$$

Il faut en outre relier cette valeur à la valeur maximum, I, de l'intensité. L'évaluation des intégrales:

$$\int_{\Delta t} e^{[(t-t_0)/\tau]^2} dt \quad \text{et} \quad \int_{\Delta S} e^{-[\delta r^2/r_0^2]} dS, \quad (21)$$

conduit à un rapport  $\frac{I}{I_m} = 1.61 \delta$ .

Les valeurs obtenues pour I sont de l'ordre de 10<sup>11</sup>W/cm<sup>2</sup>.

δ dépend de la distribution radiale du laser, (  $1/\sqrt{\delta}$  est la

largeur à  $1/e$  de la gaussienne considérée). La figure (18) montre la distribution radiale d'intensité obtenue pour  $\delta = 1, 10, \text{ et } 25$ . L'hypothèse selon laquelle l'impulsion laser présente une distribution radiale gaussienne dans toute une section du faisceau est à l'évidence fautive à la vue de l'impact de cette impulsion obtenue sur papier photosensible. La répartition de l'énergie n'est pas uniforme mais est surtout concentrée dans à peu près un tiers de la tache laser. En fait, l'introduction, dans les calculs, d'une valeur de  $\delta$  pour laquelle l'intensité laser est justement répartie dans un tiers de la surface, limite l'"hypothèse gaussienne" à la zone où l'intensité laser est la plus grande, ce qui est probablement beaucoup plus proche de la réalité. En outre l'utilisation d'une gaussienne simplifiée énormément les calculs, ( en fait elle rend possible un calcul analytique de la plupart des intégrales). Les calculs ont été effectués avec  $\delta = 25$ .

$\sigma_1$  est la section efficace de photoionisation de l'état  $n=2$  de l'hydrogène atomique. On peut l'estimer à partir de l'équation [19]:

$$\sigma_1 = \frac{64 \pi}{3 \sqrt{3}} \alpha \left[ \frac{E_i}{h\nu} \right]^3 \frac{a_0^2}{n^5} = 10^{-2} n^{-5} \lambda^3 \quad (22)$$

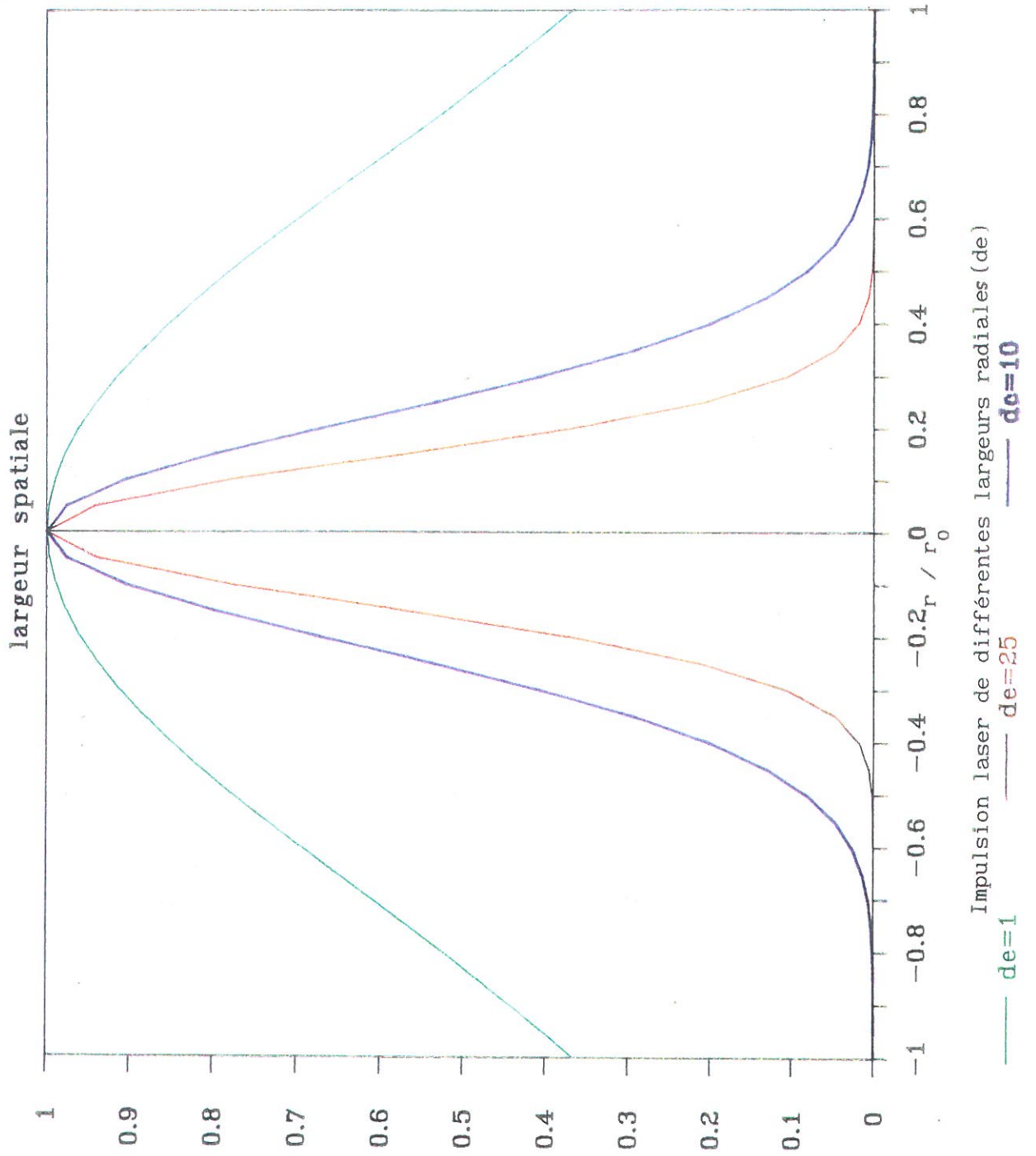
Où  $\lambda$  est en cm,  $\pi a_0^2 = 8,8 \cdot 10^{-17} \text{ cm}^2$ ,  $\alpha$ , constante de structure fine =  $1/137$ ,  $E_i = 13,6 \text{ eV}$  et  $n=2$ , nombre quantique principal du niveau considéré.

Pour  $n=2$  et  $\lambda = 3647 \cdot 10^{-8} \text{ cm}$ ,  $\sigma_1 = 1,516 \cdot 10^{-17} \text{ cm}^2$ .

Les unités employées dans le modèle sont des unités pratiques vis-à-vis du calcul, à savoir des  $\text{s}^{-1}(\text{cm}^2 \cdot \text{W})^{-n}$ , où  $n$  est le nombre de photons absorbés. Dans le cas  $n=1$ , pour passer de ces unités aux unités plus classiques, les  $\text{cm}^2$ , il faut multiplier  $\sigma$  par le flux en  $\text{W/cm}^2$  et diviser par le flux en  $\text{photons/cm}^2 \cdot \text{s}$ , c'est à dire :



# LASER



I laser (u.a)

Figure n° 18

$$\sigma \left[ \text{cm}^2 \right] = \frac{\Phi(W)/S(\text{cm}^2)}{\Phi' \text{ (photons)}/(S(\text{cm}^2) t(\text{s}))} \times \sigma \left[ \text{cm}^2/\text{s W} \right] \quad (23)$$

$$= \frac{\Phi(W)}{\Phi' \text{ (photons)}/ t(\text{s})} \times \sigma \left[ \text{cm}^2/\text{s W} \right] \quad (24)$$

Avec  $\Phi' = \frac{E \text{ (J)}}{h\nu(\text{eV}) 1,6 \cdot 10^{-19}}$  et  $\Phi(W) = \frac{E \text{ (J)}}{t}$ , on a donc

$$\sigma \left[ \text{cm}^2 \right] = h\nu(\text{eV}) \times 1,610^{-19} \times \sigma \left[ \text{cm}^2/\text{W s} \right] \quad (25)$$

Nous utiliserons donc une valeur de  $\sigma_1$  égale à, avec  $h\nu = 3.4 \text{ eV}$ :

$$\sigma_1 = 1,516 \cdot 10^{-17} / (3,4 \times 1,6 \cdot 10^{-19}) = 27,8 \text{ cm}^2/\text{W s}$$

Cependant il est important de noter que la valeur de  $\sigma_1$  n'influe pratiquement pas sur les résultats: des calculs effectués avec des valeurs de  $\sigma_1$  égales à 10 et à 100 montrent que la variation n'est au maximum que de quelques pourcents par rapport aux résultats obtenus avec la valeur "nominale" de  $27,8 \text{ cm}^2(\text{s.W})^{-1}$ . Ceci se comprend très bien si l'on considère le fait qu'une fois que tous les atomes excités sont ionisés, une augmentation de  $\sigma_1$  ne peut changer ce nombre; l'influence de  $\sigma_1$  est donc essentiellement limitée au début et à la fin de l'impulsion laser et aux "bords" du volume d'interaction.

Enfin  $\sigma_3$  est la section efficace d'excitation à trois photons de l'état fondamental vers le niveau  $n=2$  de l'atome d'hydrogène. Cette section efficace n'est pas connue; sa valeur est un des paramètres du calcul, ainsi que  $n_0$  densité d'atomes d'hydrogène qui sera introduite dans le calcul sous la forme d'une pression partielle (en supposant une température égale à 300 K).

Le tableau (2) résume les différentes valeurs et significations des grandeurs utilisées dans le calcul.

nom	signification	valeur
$\delta$	$1/\sqrt{\delta}$ largeur à 1/e du laser	25
$\tau$	largeur à 1/e (en temps) du laser	$7 \cdot 10^{-9}$ s
$\theta$	divergence du faisceau	$9 \cdot 10^{-4}$ rad
A	diminution du flux d'une isophote à l'autre	1,01
Nm	nombre d'isophotes	300-600
lt	durée de vie de H(n=2)(2p)	$2,13 \cdot 10^{-9}$ s
$\sigma_1$	section efficace de photoionisation de H(n=2)	27,8 $\text{cm}^2/\text{s W}$
$\sigma_3$	section efficace de photoexcitation à trois h $\nu$ de H fond	? $\text{s}^{-1} (\text{W}/\text{cm}^2)^{-3}$
$P_0$ ( $n_0$ )	pression partielle d'atomes	? (Torr)

Tableau [2]

Paramètres intervenant dans le calcul, les ? sont les inconnues

h) Fonction de corrélation des photons.

De nombreuses études théoriques ont montré que pour rendre compte de certaines expériences, les probabilités de création d'une particule par un phénomène multiphotonique, devaient être augmentées d'un facteur dépendant du nombre de modes du laser [20] et relié à une fonction dite de corrélation des photons. Ce facteur varie de la valeur un, si le rayonnement est parfaitement cohérent (au sens de Glauber [21]), à la valeur P! (avec P: ordre d'interaction) pour un rayonnement comprenant de nombreux modes. Certains auteurs considèrent que le rayonnement doit être

considéré comme incohérent, et donc le facteur  $P!$  pris en compte, si le nombre de modes du laser est supérieur à l'ordre d'interaction (Agostini et al [22]).

Dixit et Lambropoulos [23] ont même montré que dans le cas d'une résonance avec des niveaux liés intermédiaires, ce facteur pouvait être supérieur à  $P!$ , mais dépendait dans ce cas des détails du processus et de l'intensité laser.

En l'absence de résultats clairs applicables à notre cas, le facteur  $3!$  a été pris en compte dans le modèle, le nombre de modes étant estimé à cinq dans notre expérience, et donc supérieur à l'ordre d'interaction. Cette "incertitude" sur ce facteur n'a cependant aucune incidence sur le nombre d'ions créés par le laser que donne le calcul, seules les valeurs déduites des sections efficaces doivent être en fait comprises comme incluant la fonction de corrélation des photons.

## II) CALCUL DU NOMBRES D'IONS CREES PAR LE LASER

Le modèle présenté fournit un nombre d'ions, il faut donc avant de comparer modèle et expérience, transformer le signal expérimental en un nombre de charges.

### a) Nombre de charges collectées

Dans les expériences présentées, l'acquisition du signal a été effectuée par l'intermédiaire d'un oscilloscope digital à mémoire (Lecroy) et d'un moyennneur boxcar (EG&G).

Les charges créées par l'interaction laser-gaz sont collectées en appliquant une tension continue entre deux électrodes situées de part et d'autre du point focal, suivant le schéma suivant, qui donne le circuit équivalent au système de détection.

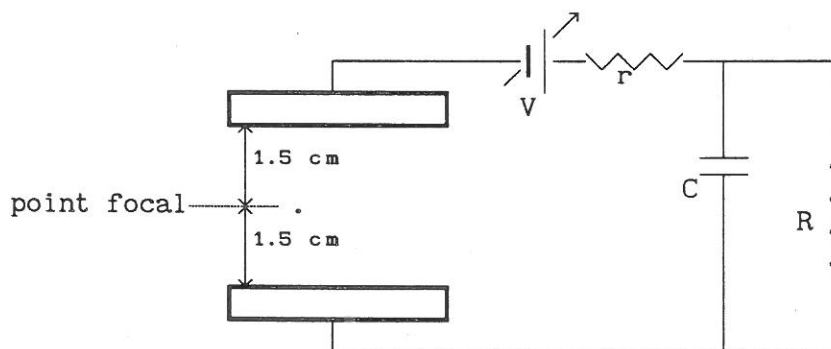


Schéma du dispositif de détection des charges

V est la tension variable.

r est la résistance série du circuit de liaison + oscilloscope

R résistance d'entrée de l'oscilloscope ( $r \ll R$ )

C capacité parasite des câbles + oscilloscope

Considérons le signal enregistré sur le Lecroy, son maximum est relié au nombre de charges collectées par :

$$N^+ = \frac{V_m C}{e}, \quad (26)$$

où:  $e$  est la charge de l'électron

$V_m$  est la tension maximum enregistrée

$C$  est la valeur totale des capacités (capacité d'entrée du Lecroy plus capacités des liaisons).

Cette capacité totale est égale à 60 pF.

Des comparaisons effectuées entre les signaux recueillis sur le boxcar et sur l'oscilloscope ont montré que la tension enregistrée par le boxcar était deux fois moindre que sur le Lecroy ; ceci étant dû d'une part aux liaisons différentes et d'autre part à la méthode même d'acquisition par le boxcar qui a tendance à écreter le signal. La formule pratique d'évaluation du nombres de charges collectées qui a été utilisée est donc:

$$N^+ = \frac{V_m (\text{boxcar, en volts}) \times 2 \times 60 \cdot 10^{-15}}{1,6 \cdot 10^{-19}} \quad (27)$$

que l'on peut écrire:

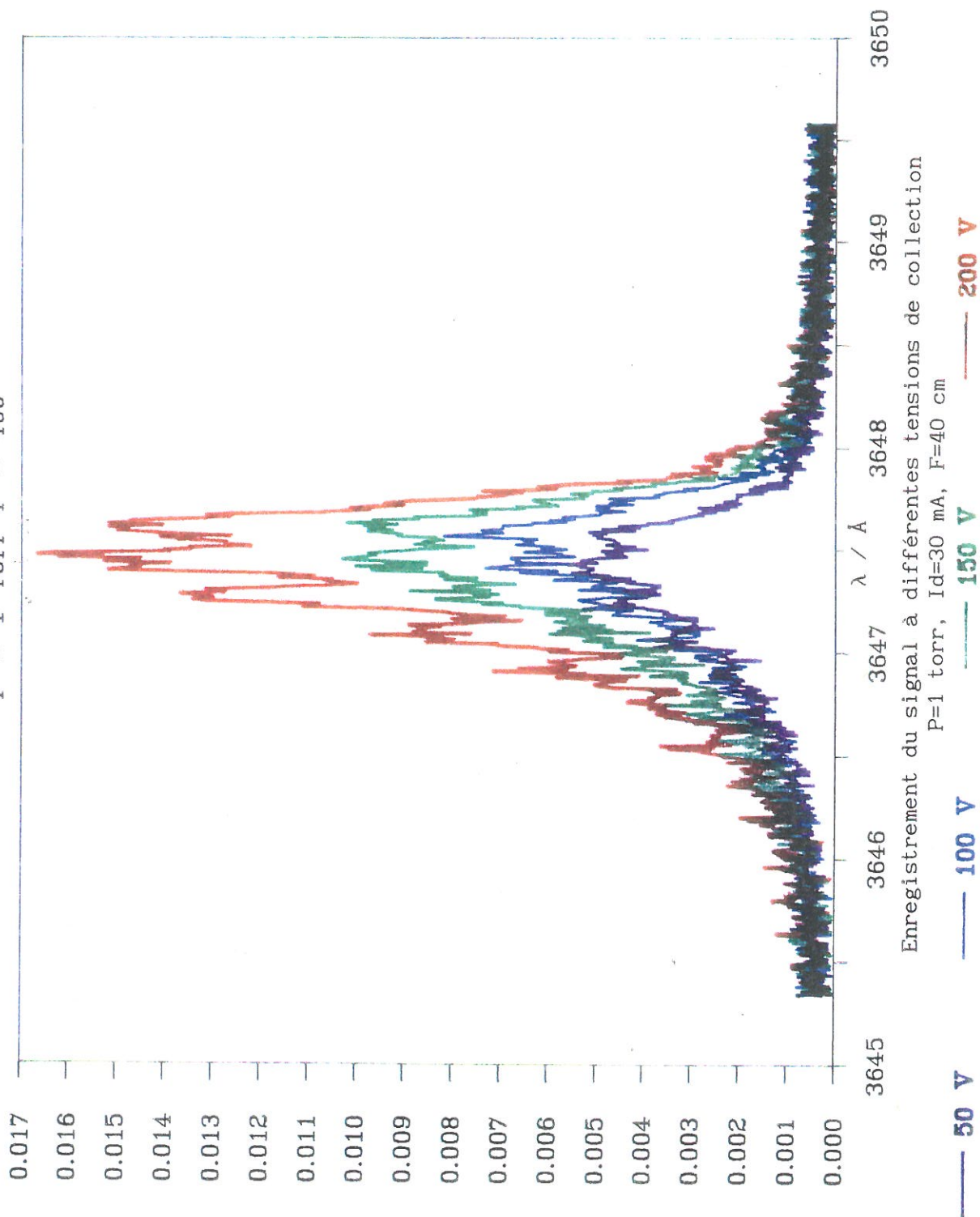
$$N^+ (\text{millions de charges}) = V_m (\text{boxcar, en mV}) / 1,34. \quad (27 \text{ bis})$$

b) Nombre de charges créées.

Une série d'expériences a été entreprise pour étudier l'effet d'une variation de la tension de collection sur le nombre de charges collectées. Les résultats sont présentés sur la fig (19). Lorsqu'un électron est créé par le laser, il peut acquérir sous l'action du champ électrique suffisamment d'énergie pour ioniser des particules. Cet effet bien connu de multiplication de charges par collisions est quantifié par le premier coefficient de Townsend  $\alpha$  : le facteur de multiplication est égal à  $\exp(\alpha d)$ , où  $d$  est ici 1,5 cm et où  $\alpha$  dépend de  $E/n$ . Des calculs ont été effectués avec les données de Badereu [24] qui propose une formule de calcul de  $\alpha$ :

# Effets de la tension de collection

P = 1 Torr F = 400



signal / V

Figure n° 19

$$\frac{\alpha}{P} = A \exp \frac{B}{E \times \frac{1}{P}} \quad (28)$$

où P est la pression et A et B des constantes égales pour l'hydrogène à, respectivement, 5 (cm Torr)<sup>-1</sup> et 300 V(cm Torr)<sup>-1</sup>. D'autres calculs ont été effectués avec les données expérimentales de Rose [25] et Kontoleon [26]. A une tension de collection égale à 100 V, qui est la tension utilisée dans la plupart de nos expériences, et une pression d'un Torr le coefficient de multiplication est égal à 1,07, le nombre de charges collectées est donc sensiblement égal au nombre de charges créées.

La figure (20) résume les résultats obtenus. Les deux courbes (alph théo et alph exp) représentent les calculs effectués respectivement avec les données de Badereu et avec les données expérimentales; ces courbes ont été normalisées en multipliant le coefficient exp(αd) par le nombre de charges collectées à une tension de 150 V. Le bon accord entre les calculs et les points expérimentaux (maxima des courbes de la fig (19)) nous assurent que le signal obtenu sur le boxcar est bien relié de façon contrôlée au nombre de charges créées.

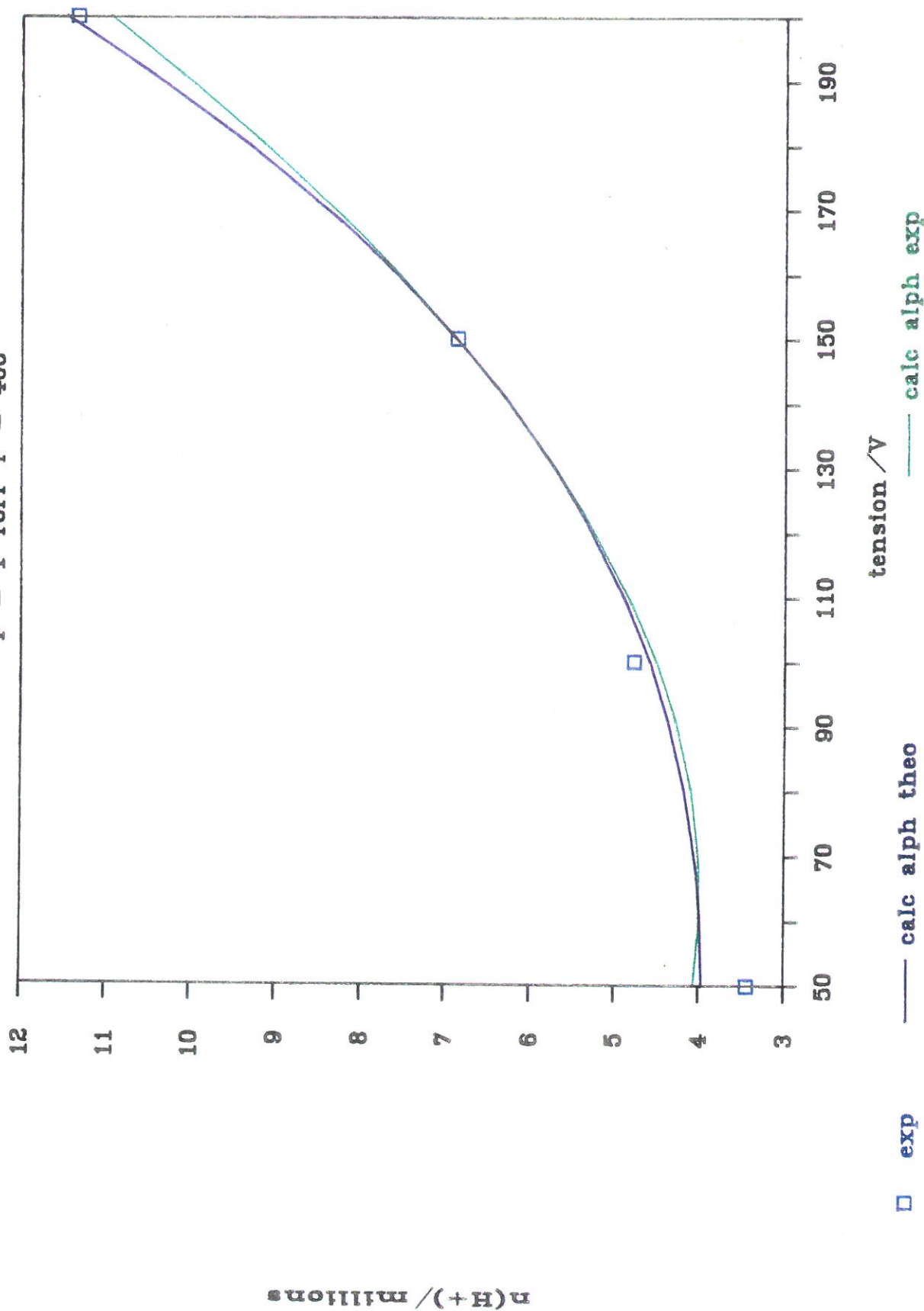
Le léger désaccord visible aux faibles valeurs de la tension de collection peut s'expliquer par le fait qu'à ces valeurs, toutes les charges créées peuvent ne pas être collectées: ces charges effectuant un plus grand nombre de collisions pendant le "temps de collection" (leur vitesse est moindre) des phénomènes de recombinaison peuvent avoir lieu.

En conclusion, à la pression d'un Torr et à la tension de collection utilisée dans les expériences, V = 100 V, le nombre de charges créées est égal au nombre de charges collectées, et ces charges sont bien des ions H<sup>+</sup>.



# EFFET DE LA TENSION DE COLLECTION

P = 1 Torr F = 400



Evolution du nombre d'ions collectés avec la tension de collection  
 Comparaison du comportement expérimental et théorique

$n(H+)/\text{millions}$

Figure n° 20

### III) EVOLUTION DU NOMBRE DE CHARGES EN FONCTION DU FLUX LASER.

L'évolution du nombre d'ions créés en fonction de l'énergie laser est représentée fig (21), obtenue avec une focale de 20 cm, à une pression d'un Torr et un courant de décharge de 65 mA. Notons que cette figure est identique à la fig (9) si ce n'est que les ordonnées sont maintenant des nombres d'ions .

Des calculs ont été effectués pour reproduire cette évolution.

Dans le modèle présenté deux grandeurs ne sont pas connues a priori : la section efficace de photoexcitation à trois photons de l'atome d'hydrogène et la pression partielle d'atomes. Des couples de ces valeurs  $[\sigma_3; P]$  ont été introduits dans le modèle en vue d'obtenir le meilleur accord possible entre l'expérience et les calculs; le couple permettant cet accord, s'il existe, fournit alors une détermination de ces deux valeurs.

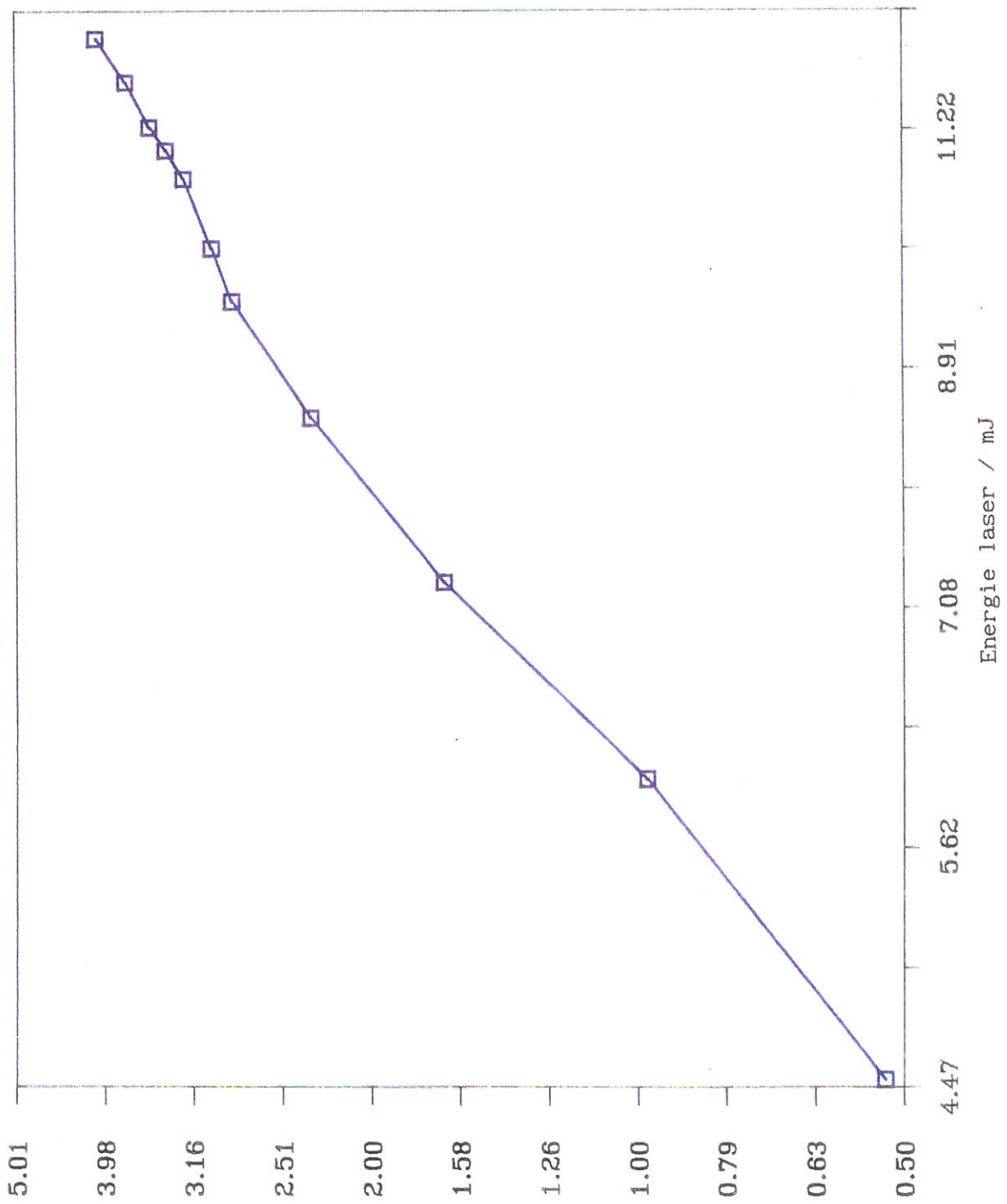
Une des questions essentielles est dès lors de savoir si la détermination du couple  $[\sigma_3; P]$  ainsi obtenue est unique où non, autrement dit, si l'accord calcul-expérience n'est possible qu'avec un seul couple .

Pour répondre à cette question des séries de calculs ont été faites en ne faisant varier qu'un seul des deux paramètres.

La figure (22) montre, à une valeur fixe de la section efficace, le comportement du calcul vis à vis de la pression. Trois séries de calculs ainsi que des valeurs expérimentales sont représentées. Remarquons tout d'abord qu'un bon accord peut être obtenu entre le calcul et l'expérience, comme le montre la courbe

# Effets de la puissance laser

P= 1 Torr Id=65 mA F=200



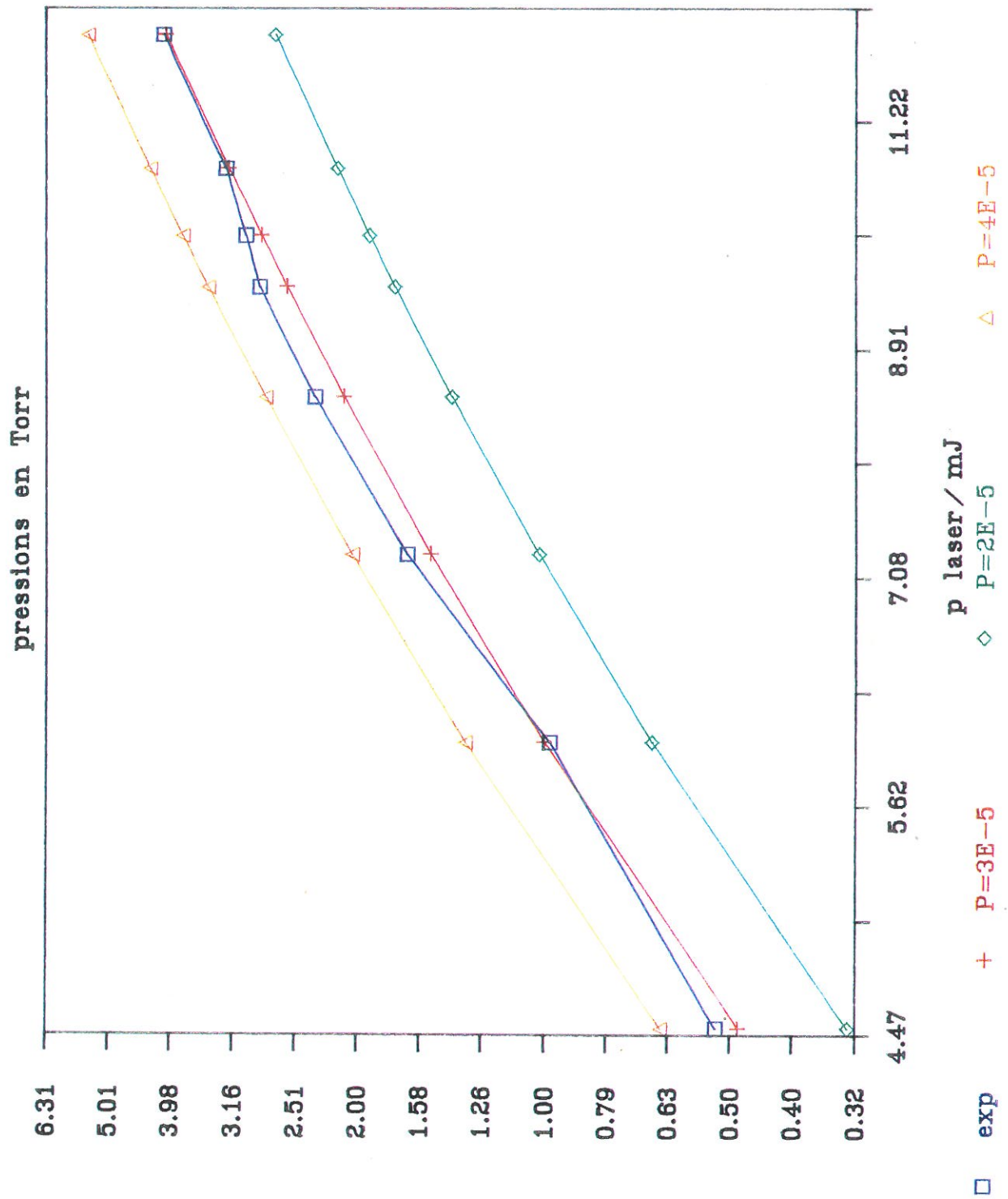
Evolution du signal avec la puissance laser

n(H+) / Millions

Figure n° 21



$\Sigma = 18 E^{-27}$



Comparison calcul-expérience;  $\sigma$  fixe, différentes pressions

$n(H+)/\text{millions}$

Figure n° 22



correspondant à une pression de  $3 \cdot 10^{-5}$  Torr reproduite isolément sur la figure (23).

Cependant, les trois courbes calculées sont très semblables, elles ne diffèrent que par les valeurs absolues du nombre d'ions créés. On pourrait penser qu'il suffit de faire varier la section efficace pour retrouver des nombres d'ions corrects, ce qui signifierait qu'à chaque pression supposée, il existe une section efficace permettant un bon accord.

En fait ceci ne serait vrai que si une variation de section efficace n'engendrait pas de changement de "pente"; ce qui n'est pas le cas.

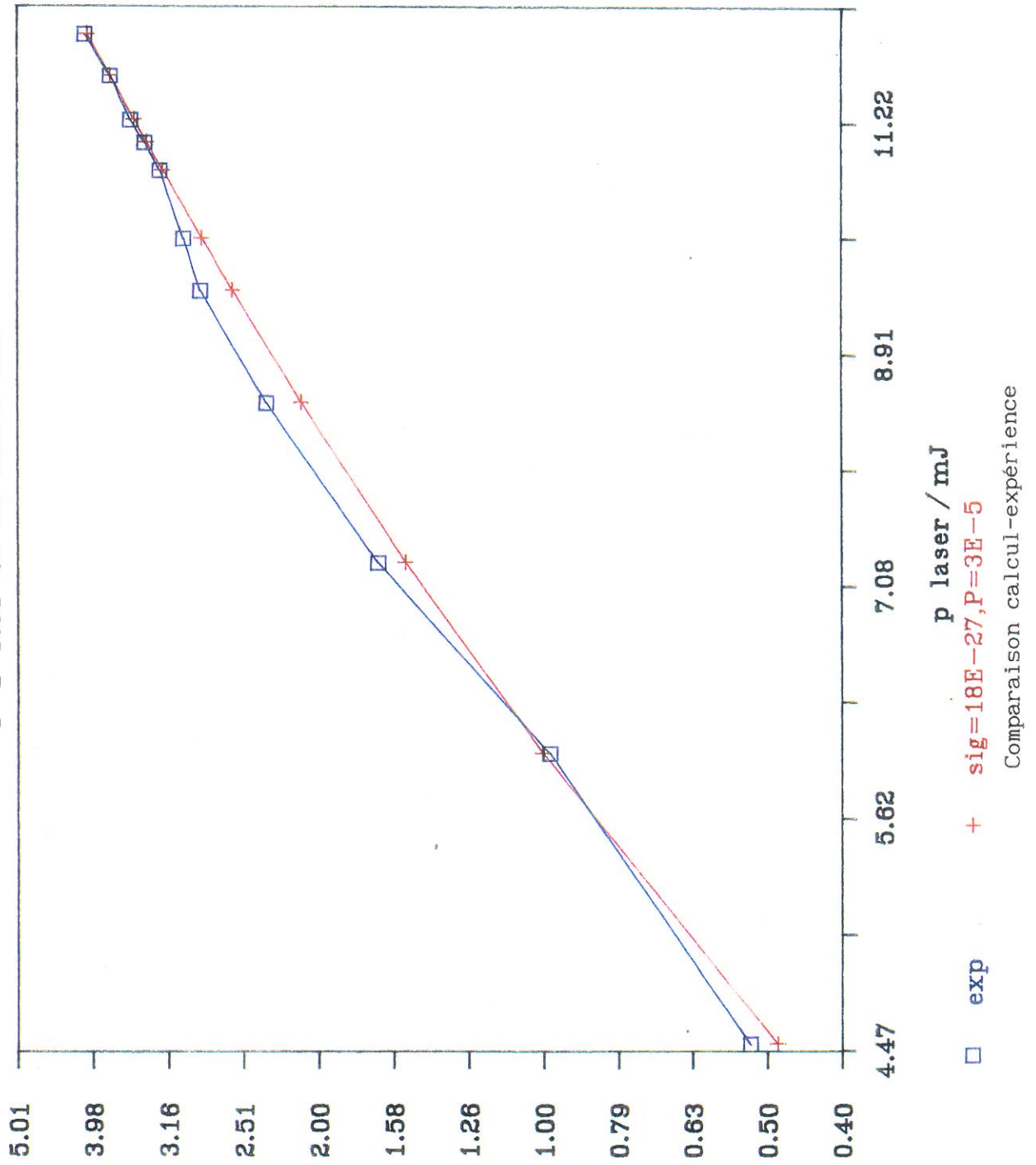
La figure (24) présente en effet une série de calculs où la pression est cette fois constante, mais où la section efficace varie; il est visible que les courbes ne sont plus superposables. En effet, les courbes correspondant aux sections efficaces les plus élevées montrent une évolution moins rapide du nombre d'ions créés. Ceci s'interprète clairement par l'hypothèse de saturation, puisqu'aux valeurs élevées de la section efficace, le pourcentage d'atomes qui sont ionisés dans un volume constant est plus grand, c'est à dire que l'effet de saturation est plus important. Il apparaît ainsi une contrainte sur le couple  $[\sigma_3; P]$  : une valeur inadéquate de la pression ne permet pas de retrouver les valeurs expérimentales du nombre d'ions, tandis qu'une valeur inadéquate de la section efficace ne permet pas de retrouver l'évolution en fonction de la puissance laser de ce nombre.

Cependant les incertitudes expérimentales rendent délicat un choix absolu du couple correspondant au meilleur accord calcul-expérience: dans une certaine gamme de valeurs il est possible d'obtenir un accord satisfaisant avec plusieurs couples.

La figure (25) illustre les limites de cette gamme: outre les valeurs expérimentales, deux courbes sont représentées, elles correspondent aux couples:  $[1,2 \cdot 10^{-26}; 4 \cdot 10^{-5}]$  et  $[3,8 \cdot 10^{-26}; 2 \cdot 10^{-5}]$ . Si l'accord est encore acceptable, les calculs effectués à

# Calcul de sigma et de P

P=1 Torr Id=65 mA F=200

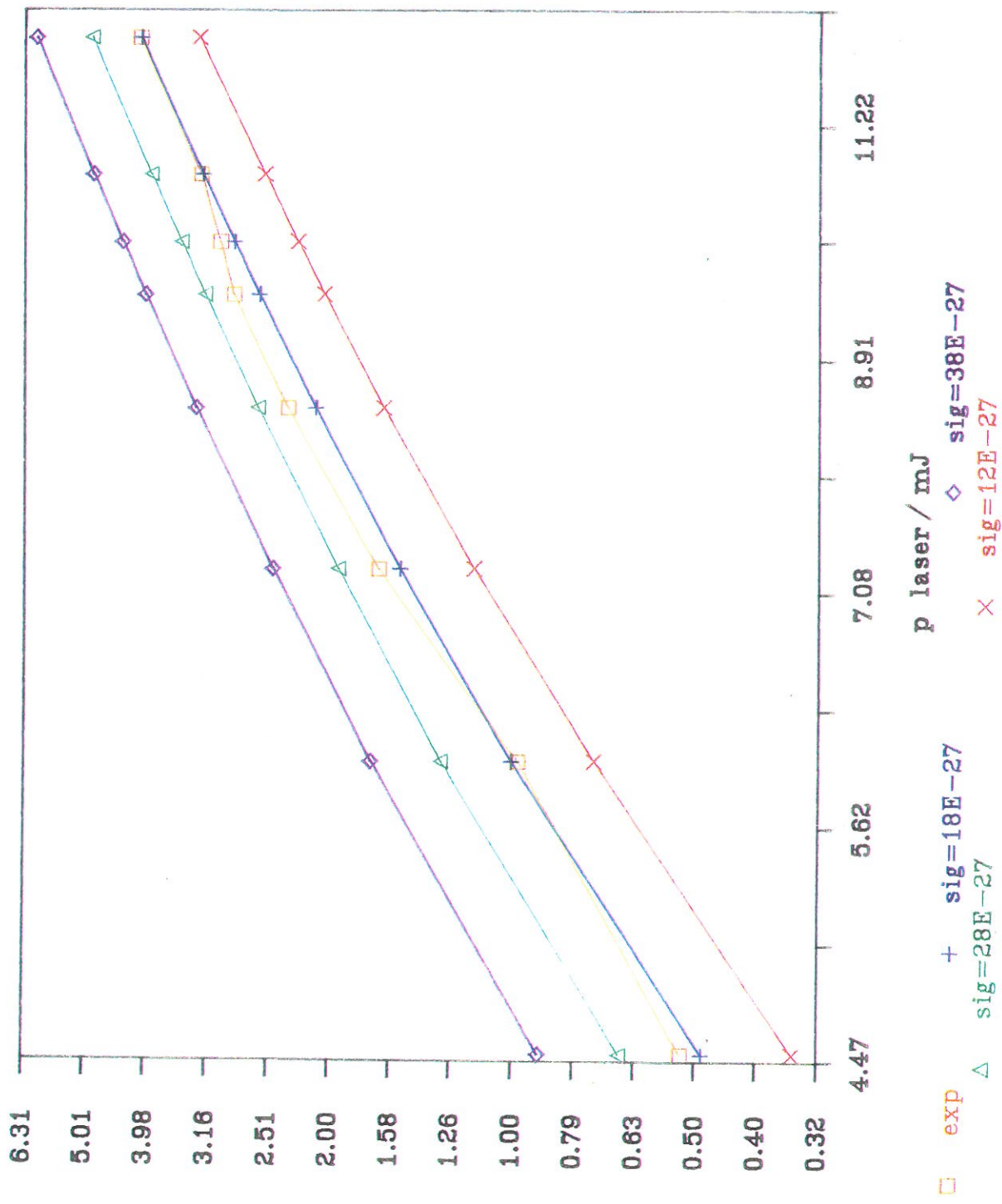


$n(H+)/\text{millions}$

Figure n° 23



Pression = 3 E-5 Torr



n(H+) / millions

Figure n° 24

Comparison calcul-expérience; différentes  $\sigma$ , pression fixe



### Calcul de sigma et de P

P=1 Torr Id=65 mA F=200

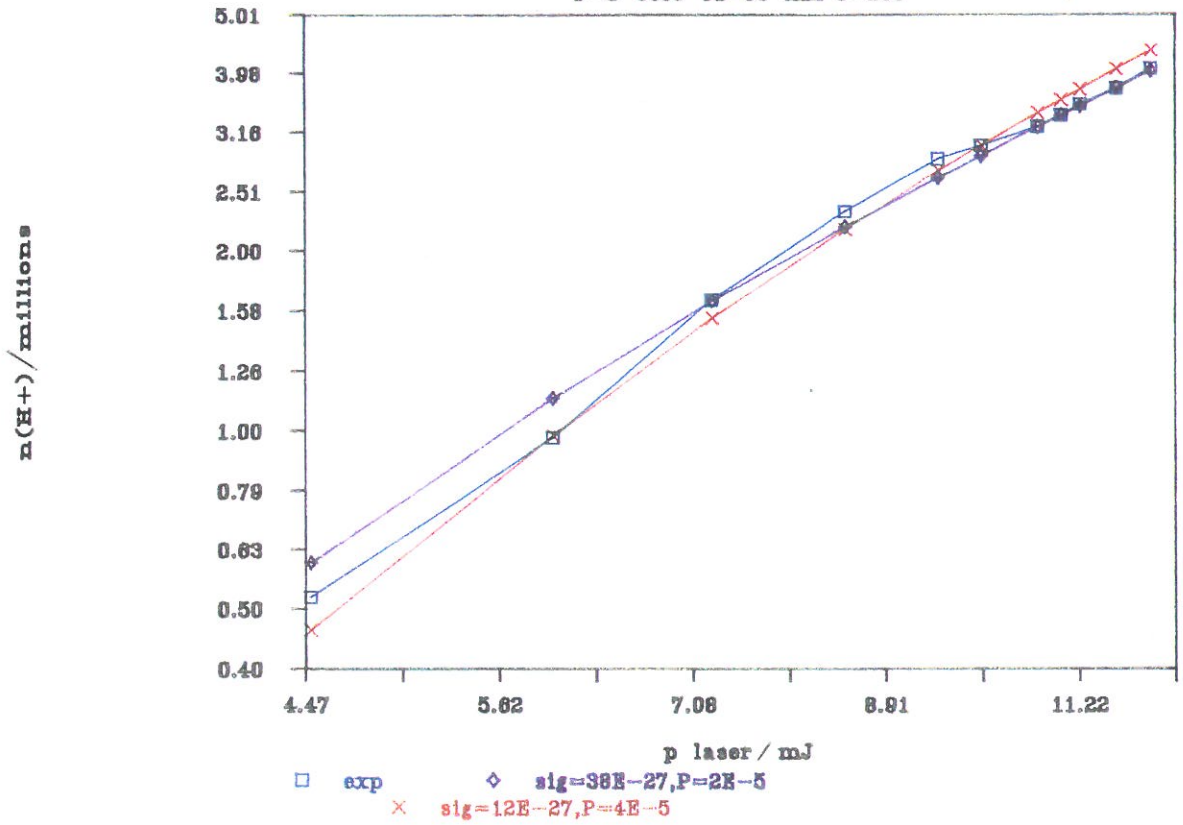


Figure n° 25

### Calcul de sigma et de P

P=1 Torr Id=65 mA F=200

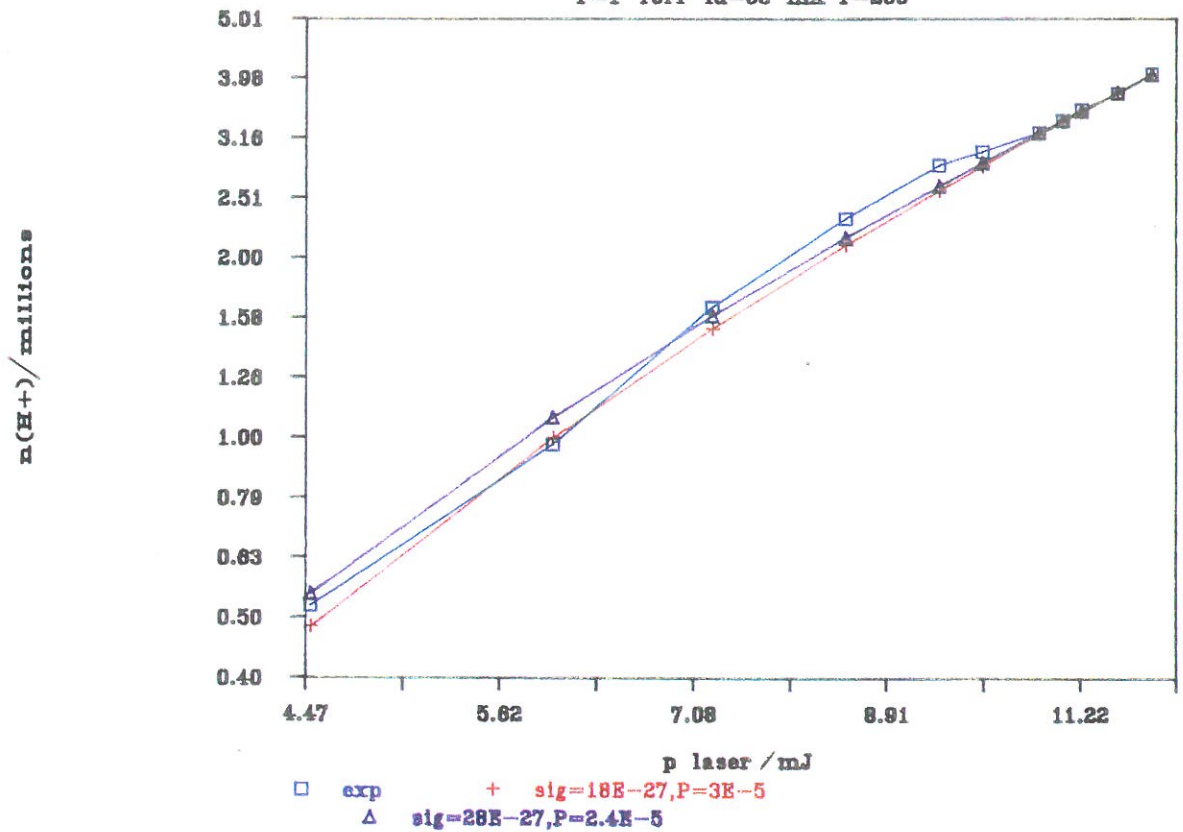


Figure n° 26



une pression de  $2 \cdot 10^{-5}$  Torr donnent des valeurs trop grandes du nombre d'ions pour les faibles valeurs du flux et vice versa, alors que les calculs correspondant à une pression de  $4 \cdot 10^{-5}$  Torr conduisent à un comportement inverse.

Rappelons que l'accord ne peut que se détériorer pour des sections efficaces et des pressions en dehors de l'intervalle considéré.

Deux autres séries de calculs sont présentées sur la figure (26), correspondant aux couples  $\left[1,8 \cdot 10^{-26}; 3 \cdot 10^{-5}\right]$  et  $\left[2,8 \cdot 10^{-26}; 2,5 \cdot 10^{-5}\right]$ , elles conduisent à un accord très satisfaisant entre l'expérience et les calculs.

#### IV) VARIATION DU NOMBRES DE CHARGES EN FONCTION DE LA LONGUEUR FOCALÉ.

Nous reproduisons figure (27) les résultats obtenus en faisant varier la longueur focale utilisée. Cette variation entraîne deux effets importants: d'une part la densité de flux est fonction de l'inverse du carré de la focale, ce qui représente un facteur cent entre des focales de 5 et 50 cm; d'autre part le "volume d'interaction" subit des variations en  $f^4$ .

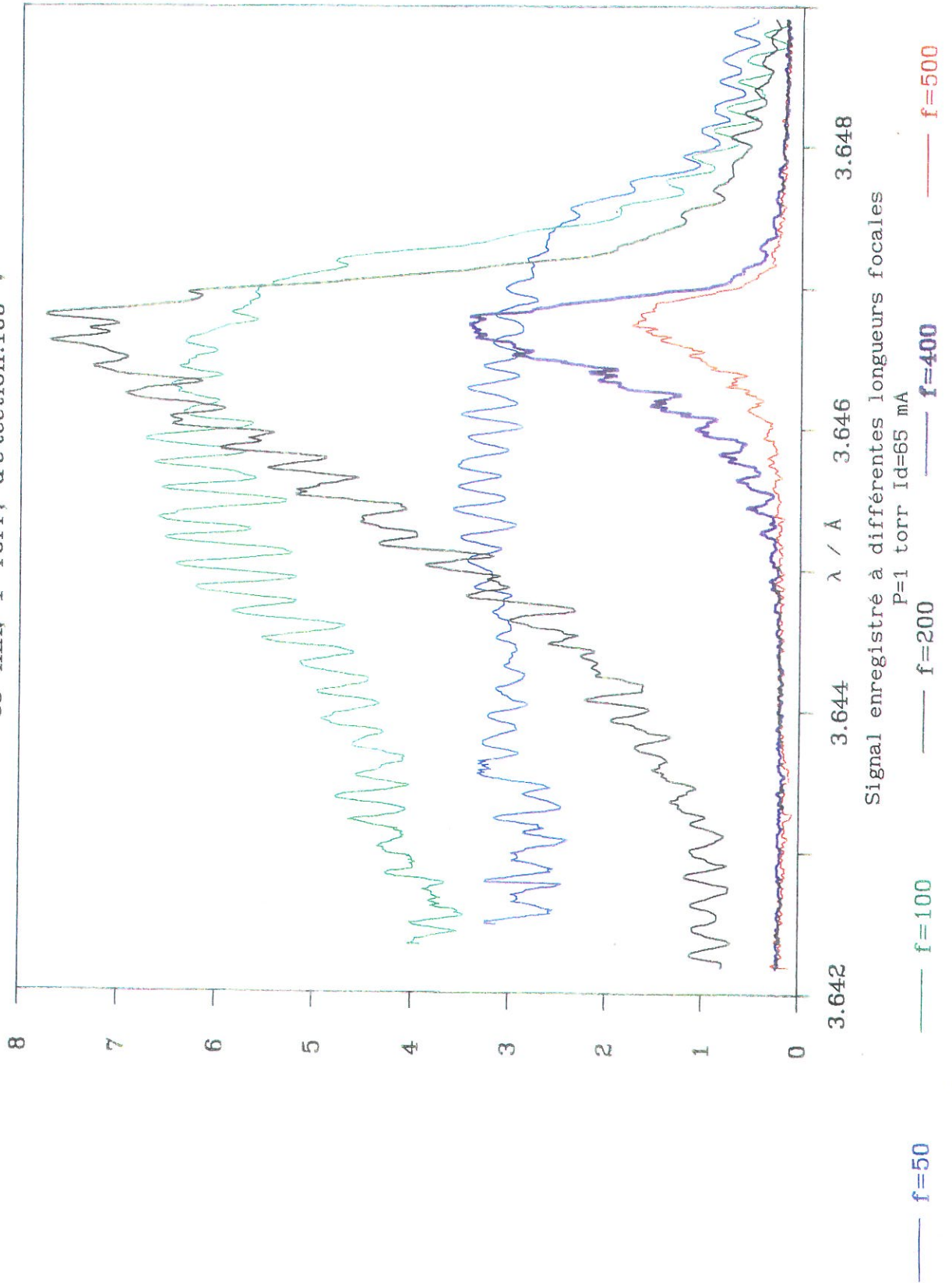
Le modèle va donc pouvoir être testé sur une plus grande gamme d'énergie, tandis que sa "géométrie" devrait pouvoir être validée par un bon accord calculs-expérience.

Le calcul fournit le nombre d'ions créés à la résonance par REMPI à (3+1) photons. C'est à la valeur expérimentale de ce nombre qu'il convient de comparer le calcul. Les maxima des courbes de la figure (27), qui correspondent effectivement à la longueur d'onde de résonance, donnent le nombre total d'ions créés par l'interaction laser-gaz.

Cependant si l'interprétation donnée plus haut (chap 4 iii) b)) de la partie expérimentale), du signal obtenu aux longueurs d'ondes inférieures à la valeur de résonance, est correcte, la valeur atteinte au maximum des courbes, pour les courtes focales, est en partie due à une ionisation non-résonnante à quatre photons. Le niveau de fond continu dû à cette ionisation non-résonnante, doit être retranché des valeurs brutes. La figure (28) présente les valeurs "brutes" du nombre d'ions (exp non corr) et les valeurs corrigées (exp). Cette correction a été apportée en supposant que le niveau de fond continu est celui atteint par le signal aux plus faibles longueurs d'ondes. Il faut noter que cette hypothèse surestime probablement le fond continu, en particulier à une

# VARIATIONS DU SIGNAL AVEC LA FOCALÉ

65 mA, 1 Torr, détection:100 V



$n(H+) / Millions$

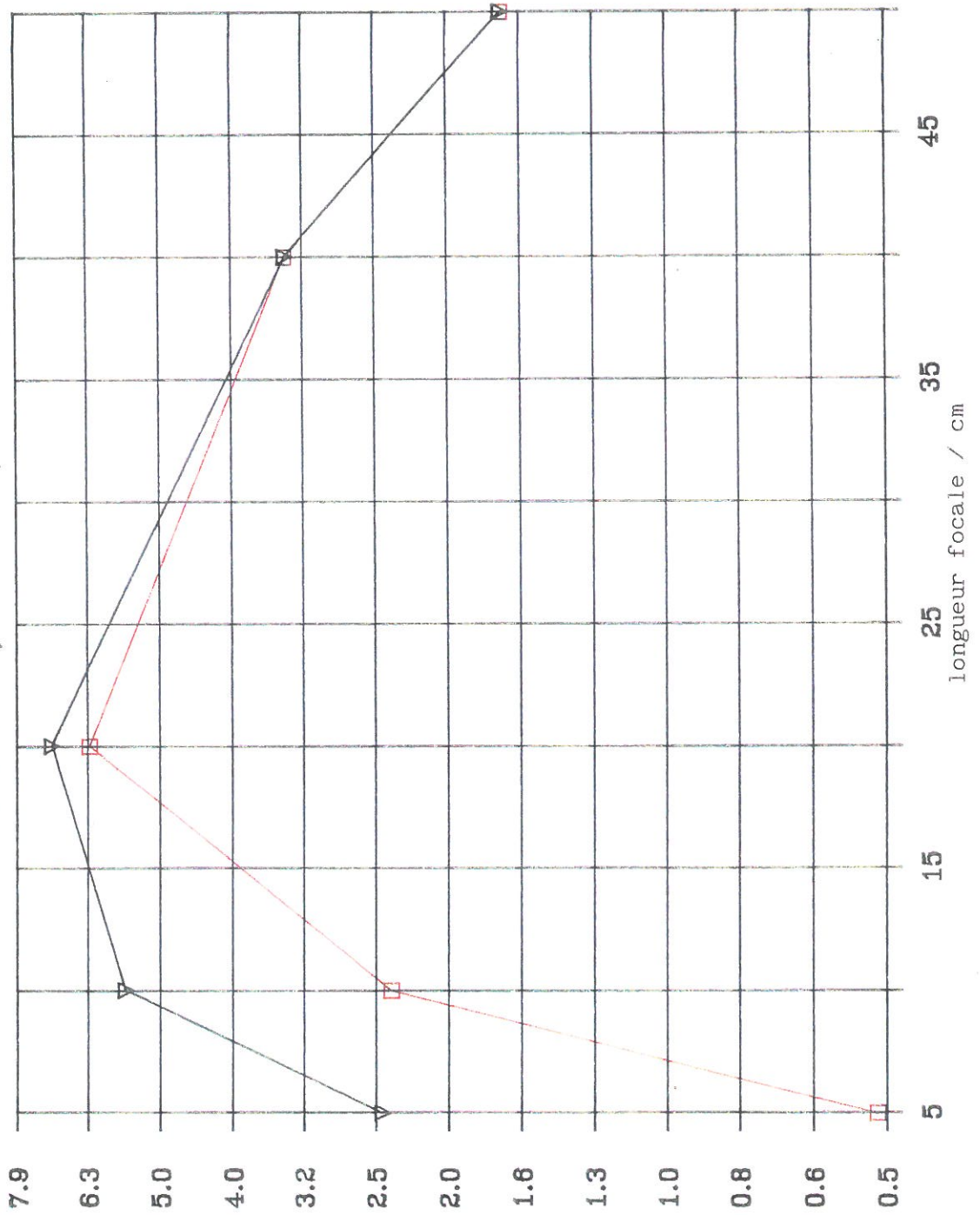
Figure n° 27





# Effets de la variation de la focale

P=1 Torr, Id=65 mA, V=100 V



Evolution du maximum d'ions en fonction de la focale (cf texte)  
□ exp ▽ non corr

n(H+) / millions

Figure n° 28



focale de 10 cm, l'élargissement étant tel que le niveau de fond continu peut n'être atteint qu'à des longueurs d'ondes plus faibles que celles étudiées. Une certaine incertitude est donc attachée aux valeurs liées aux courtes focales. En outre, c'est à ces valeurs de la focale qu'une légère dérive de la puissance laser aura le plus de conséquences sur le signal, l'effet étant cette fois proche d'une dépendance en "I<sup>4</sup>".

Des calculs ont été faits avec les quatres couples  $\left[ \sigma_3; P \right]$  précédents. Ils sont comparés sur la figure (29) à l'expérience corrigée.

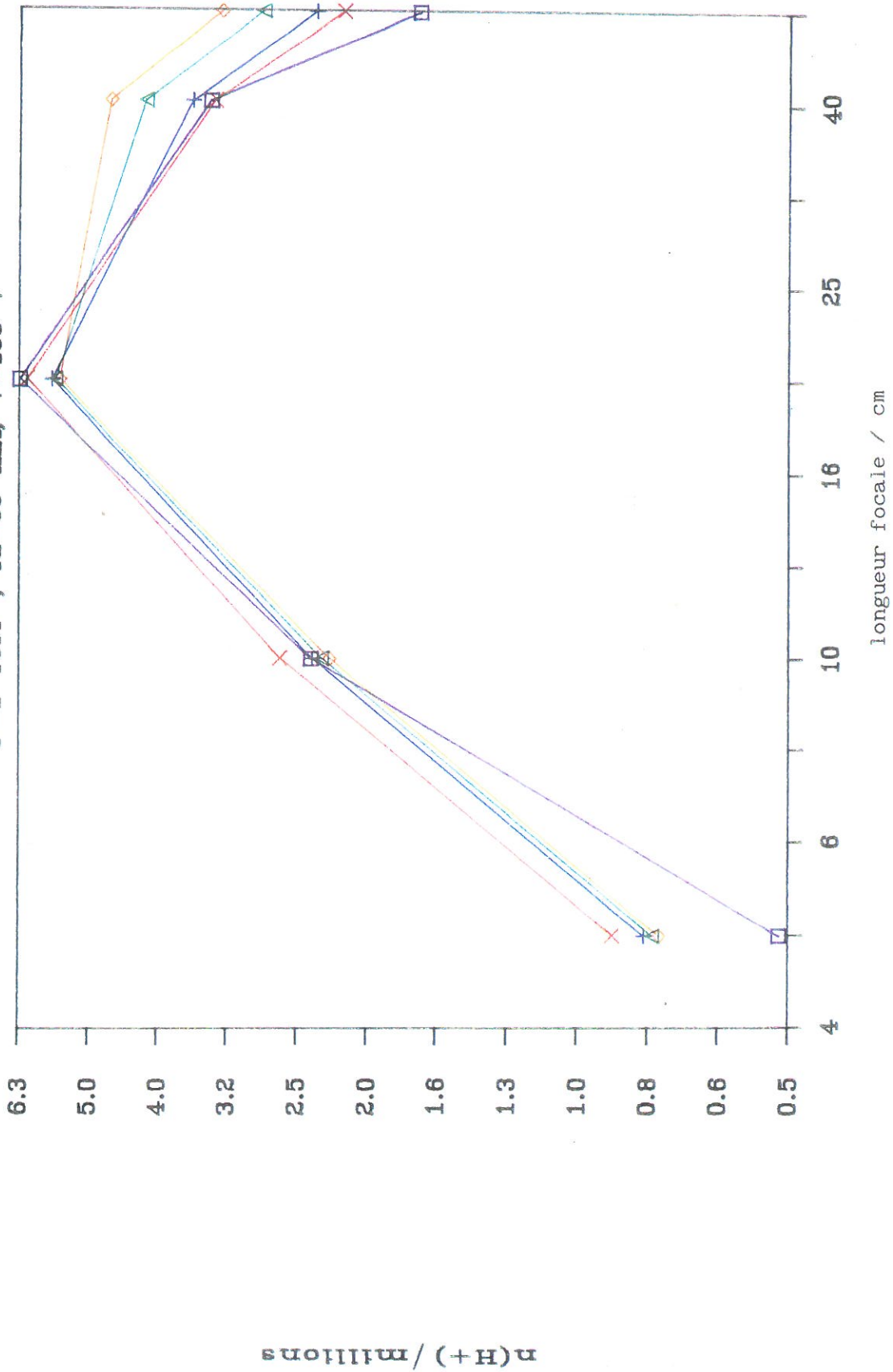
Le comportement général du nombre de charges créées en fonction de la longueur focale est reproduit d'une façon très satisfaisante par le calcul, des désaccords intervenant cependant aux valeurs extrêmes de la longueur focale.

Aux grandes valeurs de la longueur focale, qui correspondent aux faibles valeurs du flux, plus la section efficace est élevée, plus le désaccord est important. Les calculs effectués avec les couples :  $\left[ 28 \cdot 10^{-27}; 2,5 \cdot 10^{-5} \right]$  et  $\left[ 38 \cdot 10^{-27}; 2 \cdot 10^{-5} \right]$  surestiment le nombre de charges, ce comportement est cohérent avec celui noté dans les calculs précédents (cf fig (25)).

Par ailleurs, aux fortes valeurs du flux (courtes focales), le désaccord s'accroît lorsque la section efficace diminue; le nombre de charges créées est toujours surestimé. Il apparaît donc les mêmes limitations que plus haut pour le choix des couples de section-pression injectés dans le calcul, en gardant cependant en mémoire les réserves exprimées quant aux valeurs expérimentales correspondant aux focales courtes. Le couple  $\left[ 1,8 \cdot 10^{-26}; 3 \cdot 10^{-5} \right]$  conduit, dans cette série d'expériences également, à un bon accord entre les valeurs théoriques et expérimentales.

# Effets de la variation de la focale

P=1 Torr, Id=65 mA, V=100 V



□ exp + sig=18e-27, P=3e-5  
 △ sig=28e-27, P=.24e-4  
 ◇ sig=38e-27, P=2e-5  
 × sig=12e-27, P=4e-5

Evolution du maximum d'ions en fonction de la focale.  
 comparaison calcul-expérience

n(H+)/millions

Figure n° 29

## V) CONCLUSION

### i) Résumé des résultats.

Dans ce chapitre, un modèle d'interaction laser-atome a été développé. Il prend en compte les différents aspects du phénomène dit de saturation en considérant, dans l'équation de base de création d'espèces excitées :

$$d^2N^* = n_0 \sigma_3 I^3 \bar{3}! dV dt \quad (29)$$

une densité de particules cibles ( $n_0$ ) dépendant du temps et de l'espace et un volume d'interaction non constant mais dépendant en particulier du flux laser.

L'introduction dans ce modèle de valeurs particulières de la pression partielle d'atomes et de la section efficace de multiphotoexcitation à trois photons du niveau  $n=2$  de l'hydrogène atomique permet de reproduire de façon satisfaisante le comportement expérimental du nombre d'ions en fonction de différents paramètres, en particulier de la puissance laser et de la longueur focale.

Il semble donc que le modèle présenté permette de déterminer de façon quasi-univoque une pression partielle d'atomes d'hydrogène dans l'état fondamental, ainsi que la valeur de la section efficace de multiphotoexcitation du niveau  $n=2$  à trois photons. Le couple  $\left[1,8 \cdot 10^{-26}; 3 \cdot 10^{-5}\right]$  est un bon compromis entre les accords et désaccords constatés dans les deux expériences étudiées.

Ces résultats peuvent être résumés de la façon suivante:

à une pression totale d'un Torr et un courant de décharge de 65 mA, la densité d'hydrogène atomique dans l'état fondamental est environ  $1,1 \cdot 10^{12} \text{ cm}^{-3}$  à 30 cm en aval de la décharge.

la valeur de la section efficace est environ  $2 \cdot 10^{-26} \text{ s}^{-1} (\text{W/cm}^2)^{-3}$ .

## ii) Discussion

La valeur de la section efficace d'excitation à trois photons du niveau fondamental vers le niveau  $n=2$  de l'atome d'hydrogène qui a été déduite précédemment semble compatible avec celle donnée par le calcul très approximatif suivant:

considérons un volume donné; le fait que 30 pour cent, par exemple, des atomes soient ionisés à une énergie laser de 10 mJ, peut s'écrire d'une façon très simplifiée:

$$0.3 = \sigma_3 \cdot I^3 \cdot \tau$$

soit: 
$$\sigma_3 = \frac{0.3}{I^3 \tau} \quad (30)$$

Avec les valeurs de  $\tau = 7 \cdot 10^{-9}$  s,  $I = 2,5 \cdot 10^{11}$  W/cm<sup>2</sup>, ce calcul donne  $\sigma_3 \cong 10^{-27} \text{ s}^{-1} (\text{W/cm}^2)^{-3}$ .

Parmi les nombreux travaux théoriques consacrés aux phénomènes multiphotoniques, beaucoup ont été effectués sur l'atome d'hydrogène, pour lequel les calculs peuvent être effectués "exactement". La plupart de ces travaux fournissent des sections efficaces d'ionisation par absorption multiphotonique [28]; très peu, des sections efficaces d'excitation. D'autre part les cas de résonance sont en général source de divergence dans les calculs et les valeurs des sections efficaces des processus résonnants ne sont pas calculables par les formules données. Ces formules sont en outre, commè le remarque justement Ritchie [ 29 ], d'emploi peu aisé pour l'expérimentateur qui cherche à confronter ses résultats à la théorie sans avoir la possibilité d'effectuer des calculs "lourds". Tous les auteurs s'accordent cependant pour dire que les sections efficaces des processus résonnants peuvent être de nombreux ordres de grandeur plus élevées que celles de processus non résonnants.

A notre connaissance seuls Gontier et al [6 c], fournissent des données permettant d'estimer la valeur de la section efficace d'excitation à trois photons du niveau  $n=2$ . Sans rentrer dans les détails (pour cela voir [6 d]), la probabilité d'ionisation résonnante à quatre photons peut s'écrire:

$$P(I,t) = R_{ij}^2 \gamma_j t / (\delta^2 + \gamma_j^2 / 4), \quad (31)$$

soit avec  $\delta=0$  ( $\delta$  est le "detuning") :

$$P(I,t)/t = 4 |R_{ij}^2| / \gamma_j^{(1)}, \quad (32)$$

où  $\gamma_j^{(1)}$  est relié à la probabilité de photoionisation à un photon et  $R_{ij}$ , est l'élément de matrice entre l'état initial et l'état final:

$$|R_{ij}|^2 = (I/I_0)^3 |\langle 1s | D^- G_0^- D^- G_0^- | np \rangle|^2, \quad (33)$$

avec  $D$  l'opérateur dipolaire,  $G_0$  la fonction de Green :

$$[G_0 = 1/E - H_0] \quad (H_0 \text{ est l'hamiltonien}).$$

$|R_{ij}|^2$  est essentiellement la probabilité d'excitation à trois photons vers le niveau  $|np\rangle$ .

La valeur de la probabilité d'ionisation résonnante et son expression en fonction des probabilités d'excitation à trois photons et d'ionisation à un photon calculées par Gontier et al, conduisent à une valeur de :  $\sigma_3 \cong 10^{-31} \text{ s}^{-1} (\text{W/cm}^2)^{-3}$ . (Il faut cependant noter que ces probabilités sont calculées en supposant une lumière cohérente et une impulsion carrée).

D'autre part, ces auteurs ont aussi étudié la dépendance de l'ionisation multiphotonique avec l'état résonant (pour  $n$ , nombre quantique principal variant de 2 à 10). Il est possible, à partir de ces données, de dire que la section efficace d'excitation à trois photons du niveau  $n=2$  est environ trois fois plus grande que pour le niveau  $n=3$ . Muller et al [27] donnent une valeur théorique (calculée avec une largeur de bande nulle) de la section efficace d'excitation à trois photons de l'état fondamental vers le niveau  $n=3$  :  $\sigma_3(n=1 \Rightarrow n=3) = 1,079 \cdot 10^{-30} \text{ s}^{-1} (\text{W/cm}^2)^{-3}$ . Ce qui conduirait à une valeur de  $\sigma_3(n=1 \Rightarrow n=3) \cong 3 \cdot 10^{-30} \text{ s}^{-1} (\text{W/cm}^2)^{-3}$ .

Ces valeurs théoriques sont donc relativement faibles en comparaison de celle proposée; là encore une meilleure connaissance des propriétés spatio-temporelles du laser serait nécessaire pour préciser la valeur de  $\sigma$  proposée.



## VI) VARIATION DE LA DENSITE EN FONCTION DU COURANT ET DE LA PRESSION

Une série d'expériences a été effectuée à différentes pressions et courants de décharge: le courant varie dans la gamme 5-90 mA, pour des pressions totales égales à 1, 2, 3, 5 et 8 Torr.

### i) Résultats.

Les courbes représentant l'évolution du nombre d'ions collectés sont présentées sur la figure (30). Dans cette série d'expérience, la lentille utilisée a une longueur focale de 40 cm.

En utilisant le modèle précédemment présenté, il est possible de connaître la densité absolue d'hydrogène atomique dans l'état fondamental présent au point de focalisation. La section efficace ayant été déterminée, il suffit d'injecter dans le calcul une pression partielle d'atome telle que le calcul fournisse le nombre d'ions expérimental.

La méthode employée est en fait moins fastidieuse: le nombre d'ions créés par l'interaction du faisceau laser avec le gaz est une fonction linéaire de la pression partielle injectée dans le programme, il suffit donc de tracer cette fonction pour obtenir une correspondance simple entre le nombre d'ions et la densité.

Cet étalonnage est illustré par la figure (31). A partir de cet étalonnage, la densité atomique peut être calculée en fonction du nombre d'ions recueillis, par l'expression [déduite de l'équation de la droite  $n(H^+) = f(P \text{ partielle})$ ]:

$$\text{densité}(\text{cm}^{-3}) = 3,535 \cdot 10^5 \frac{n(H^+) + 22927,6}{1,084} \quad (1)$$

# Evolution de $n(H^+)$ en fonction de $I_d$

$f = 400 \text{ mm}$ ,  $P_{\text{tot}} = 1 \text{ à } 8 \text{ Torr}$

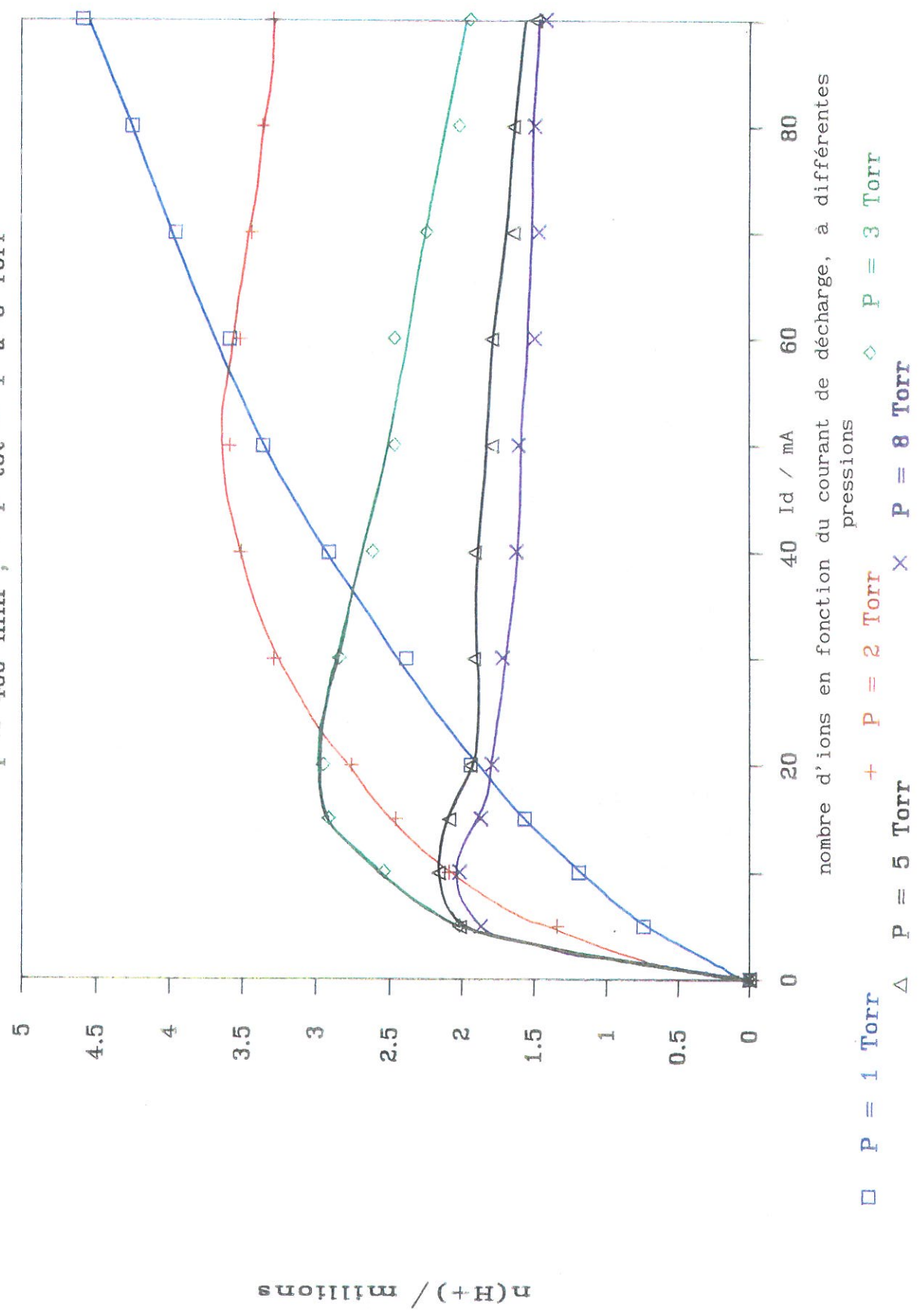


Figure n° 30

## ETALONNAGE $n(H^+)$ -PRESSION PARTIELLE

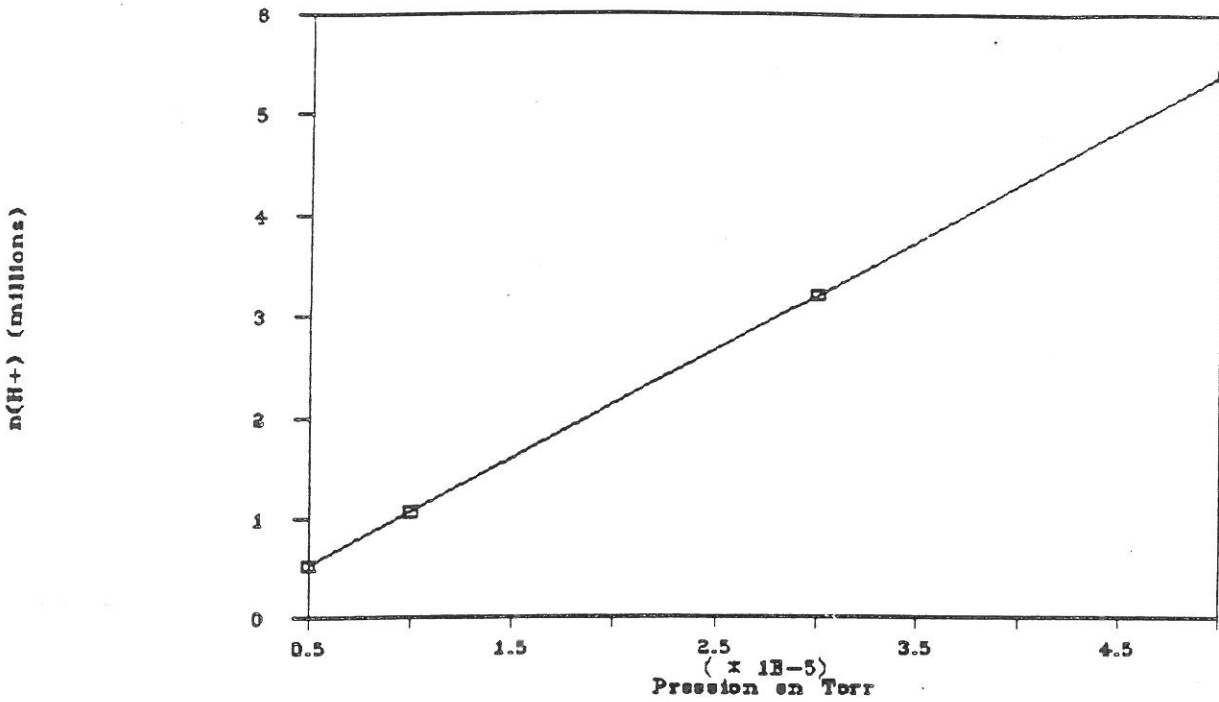


figure (31)

Evolution du nombre d'ions créés en fonction de la  
pression partielle d'atomes

Les valeurs de densité obtenues sont de l'ordre de  $10^{11}$ - $10^{12}$   $\text{cm}^{-3}$  dans cette série d'expériences, notons que des valeurs aussi faibles que  $10^9$  atomes/ $\text{cm}^3$  ont pu être mesurées.

Les courbes de la figure (32) montrent l'évolution de la densité atomique absolue en fonction du courant de décharge, à différentes pressions. Ces courbes passent par un maximum dont la position se décale vers les forts courants lorsque la pression diminue, mise à part la courbe obtenue à une pression de un Torr dont le maximum est probablement atteint à des valeurs du courant de décharge non illustrées. La densité décroît ensuite lentement aux plus fortes valeurs du courant de décharge.

Aux faibles courants et pour les pressions inférieures à 5 Torr, plus la pression est forte, plus la croissance de la densité est rapide.

Ces courbes sont représentatives des concentrations dans la

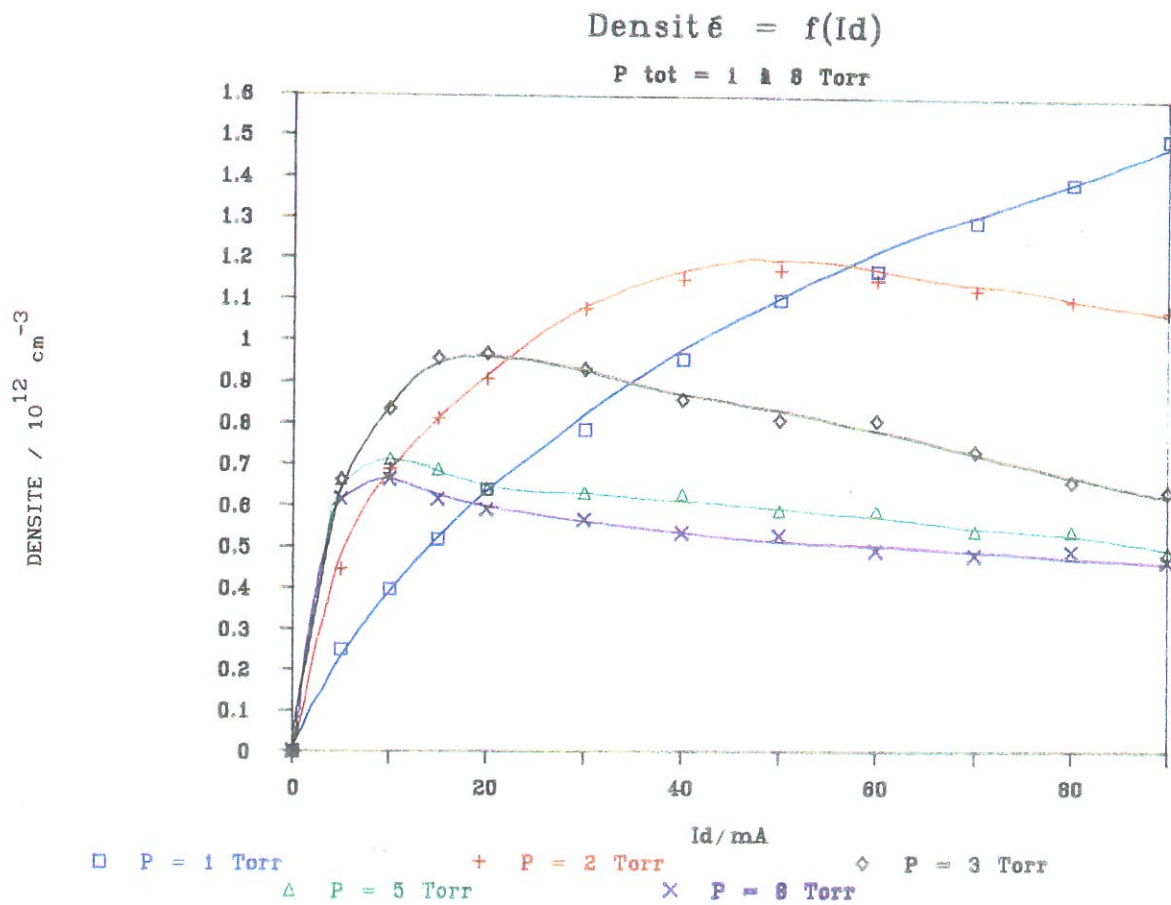


Figure n° 32

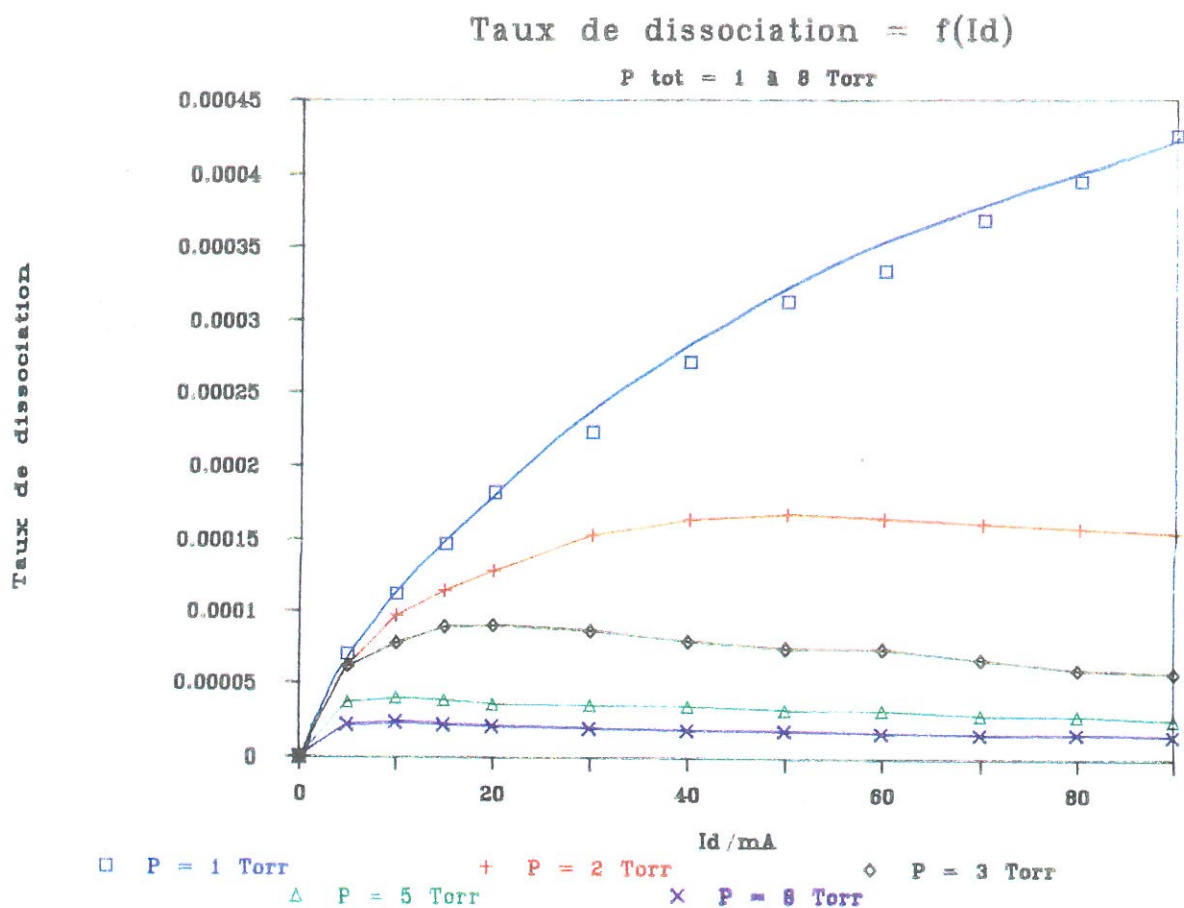


Figure n° 33

décharge, à un facteur près, calculable à partir de l'établissement des équations d'écoulement. Ce calcul a été détaillé par Touzeau [31].

Une deuxième façon de présenter ces résultats est de représenter le taux de dissociation, défini par :

$$\frac{n_H}{n_{H_2}}, \quad (2)$$

en fonction du courant de décharge (figure (33)).

Les vitesses d'écoulement peuvent être estimées par l'équation:

$$V = \frac{Q_v}{\pi R^2}, \quad \text{où } Q_v \text{ est le débit volumique et } R \text{ le rayon du tube. Pour}$$

connaître le débit volumique à partir de l'indication en l/mn standard (i.e à température et pression normale) lue sur le débitmètre, il est nécessaire de considérer le débit massique  $Q_m$ . L'équation précédente peut alors s'écrire:

$$V = \frac{Q_m k T}{\pi R^2 m P} \quad (3)$$

où  $m$  est la masse d'une molécule d'hydrogène,  $k$  la constante de Boltzman,  $P$  la pression et  $T$  la température. En tenant compte de la relation  $Q_m = Q_v \times \rho$ , avec  $\rho$  la densité ( $\text{kg/m}^3$ ), et avec  $m = 3,32 \cdot 10^{-27}$  kg, on aboutit à la relation numérique:

$$V \text{ (m/s)} = \frac{11,1 \times Q_v \text{ lu (l/mn)}}{P \text{ (Torr)}} \quad (4)$$

La figure (34) montre l'évolution de la vitesse d'écoulement en fonction de la pression.

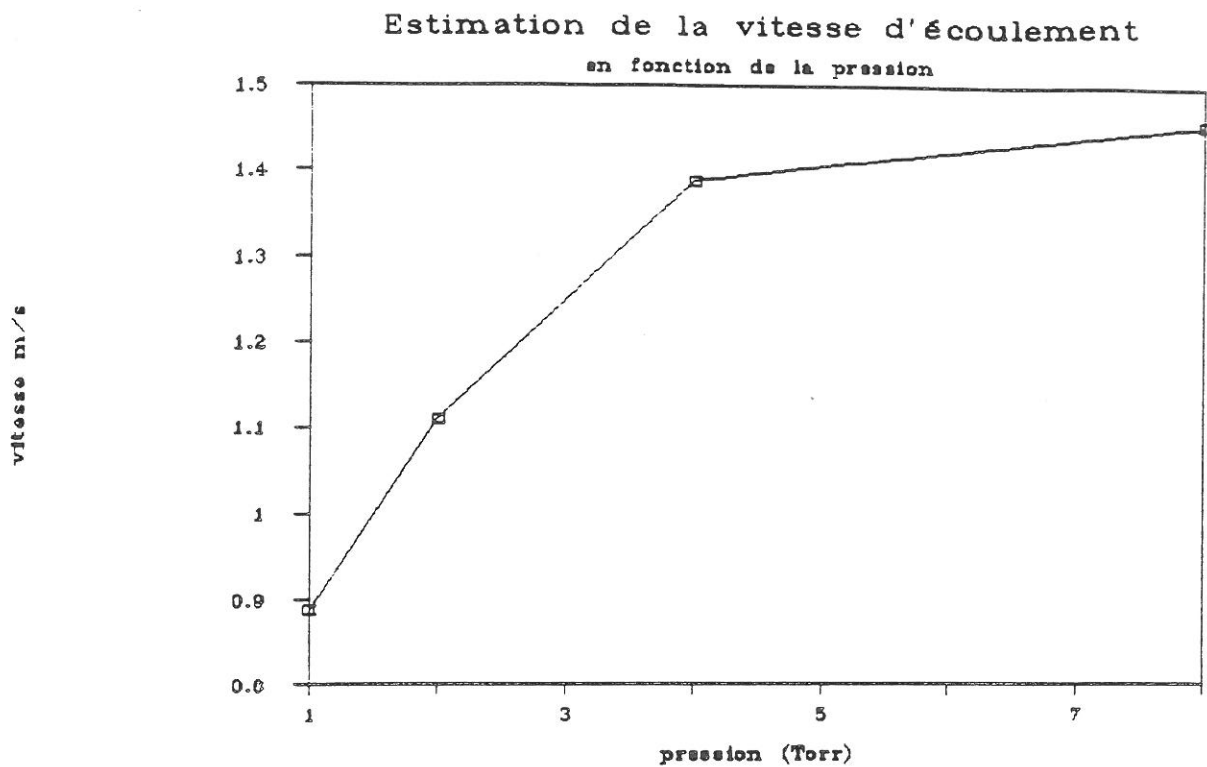


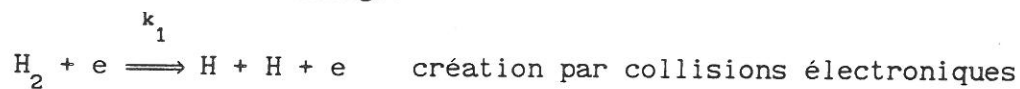
figure (34)

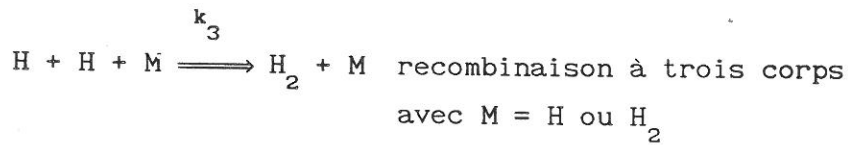
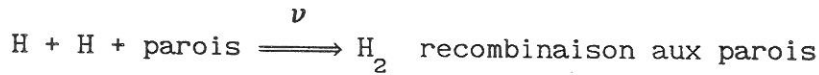
Estimation de la vitesse d'écoulement en fonction de la pression

ii) Discussion.

Il n'est pas de notre propos de construire ici un modèle complet d'une décharge d'hydrogène, la discussion présentée restera donc volontairement succincte.

Si l'on ne considère, en simplifiant beaucoup, que les réactions suivantes dans la décharge:





l'équation d'évolution de la densité atomique  $n_H$  s'écrit:

$$\frac{\partial n_H}{\partial t} = 2 k_1 n_{H_2}^2 n_e - n_H^2 \nu - k_3 n_H n_M \quad (5)$$

soit, en considérant un état stationnaire, et avec :  $n_M = n_H + n_{H_2}$

$$: \quad 2 k_1 n_{H_2}^2 n_e = n_H^2 \nu + k_3 n_H (n_H + n_{H_2}) \quad (6)$$

que l'on peut écrire:

$$n_H = \frac{2 k_1 n_{H_2}^2 n_e}{\nu + k_3 (n_H + n_{H_2})} \quad (6 \text{ bis})$$

Si l'on tient compte du fait que  $n_H \ll n_{H_2}$  (et donc  $n_{H_2} \approx \text{cte}$ , à une pression donnée), et si l'on suppose que  $k_1$  et  $k_3$  sont constants, cette équation peut s'écrire:

$$n_H = a \sqrt{n_e}, \quad \text{où } a \text{ est une constante} \quad (7)$$

Si l'on admet en outre que la densité électronique est proportionnelle au courant de décharge et à la pression [32], on peut alors écrire, à une pression donnée:

$$n_H = b \sqrt{Id}, \quad \text{où } b \text{ est une constante.} \quad (7 \text{ bis})$$

Cette équation est représentée, en même temps que la courbe expérimentale obtenue à un Torr, sur la figure (35), l'accord après normalisation est très satisfaisant. Le comportement observé

$$\text{Densité} = b \cdot \text{racine}(I_d)$$

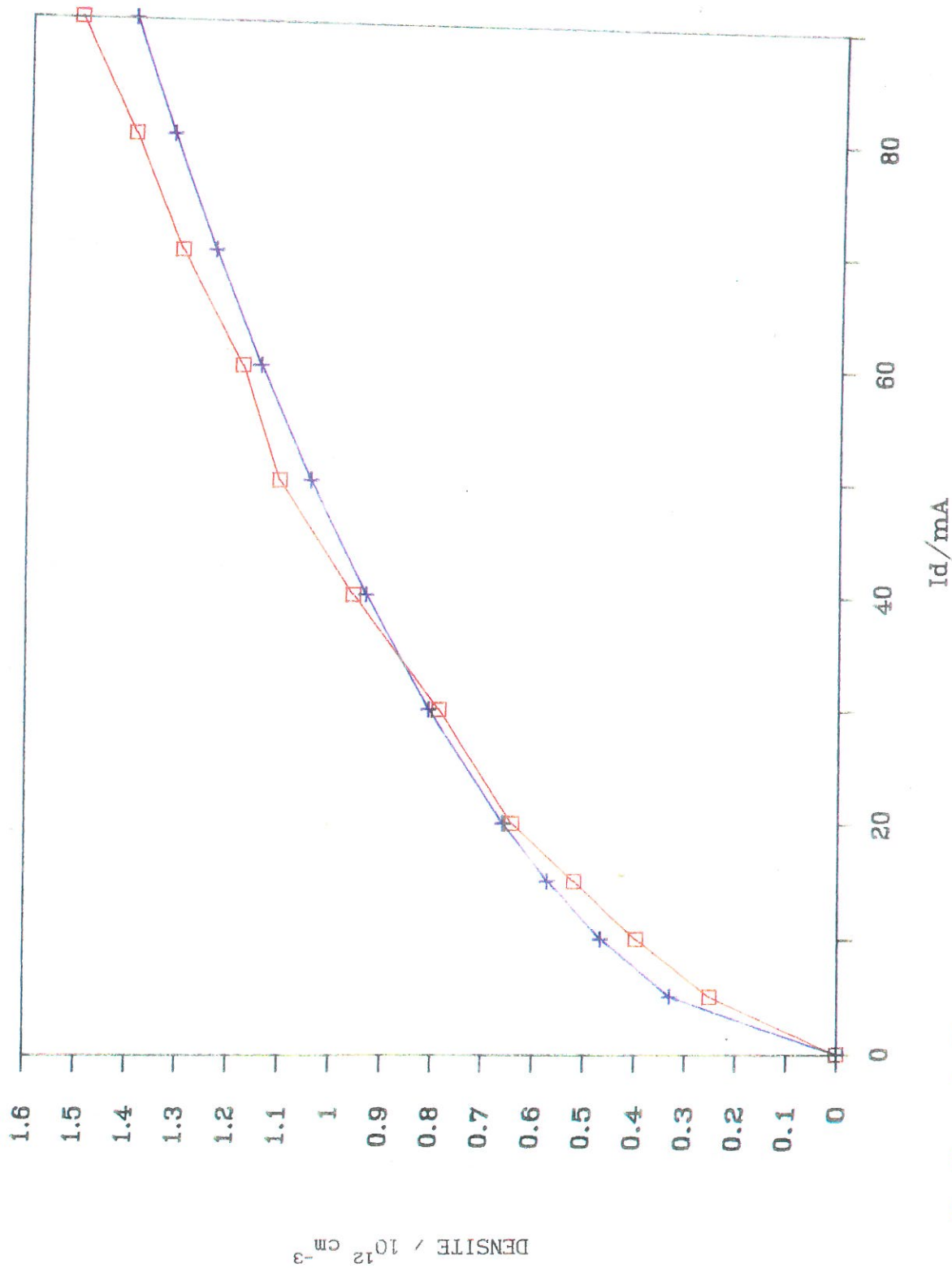


Figure n° 35



à des pressions supérieures à un Torr, à savoir une décroissance de la densité avec le courant de décharge n'est cependant pas reproduit par cette expression.

Pour établir cette dernière nous avons supposé que :

-la relation  $n_e \propto Id \times n_{H_2}$  est vraie dans une grande gamme de pression-courant, ce qui n'est pas forcément exact.

- $k_1$  est constant dans la même plage de variation, or une variation de courant (via une variation de tension), ainsi qu'une variation de pression ont une influence sur la fonction de distribution électronique, il est donc vraisemblable que cette hypothèse soit incorrecte.

D'autre part les pressions indiquées ont été mesurées dans l'enceinte, donc pour une température constante voisine de 300K, Dans le tube la température augmente avec le courant de décharge, elle peut atteindre des valeurs assez élevées, (900K pour une décharge d'oxygène à 5 torr et 90 mA [33] surtout à haute pression. Cette augmentation de la température avec le courant de décharge peut avoir plusieurs effets sur la densité atomique. D'une part elle conduit à une diminution de la densité d'hydrogène moléculaire, et donc à une diminution du terme création d'atomes. D'autre part le terme de diffusion et donc le terme pertes aux parois, va lui même être augmenté (via la vitesse).

Ces phénomènes et probablement bien d'autres peuvent être responsables des formes des courbes présentées, et en particulier de la baisse de la densité observée à des pressions supérieures à 1 Torr, en fonction du courant de décharge.

VII) PROGRAMME DE CALCUL DU NOMBRE D'IONS.

i) PROGRAMME DE CALCUL DU NOMBRE D'IONS CREES PAR LE LASER

'Ce programme est écrit en turbobasic, il suffit de répondre aux questions pour le voir calculer.  
 'Si vous desirer voir les courbes représentant le flux, le nombre d'ions, le nombre d'atomes excités et le nombre d'atomes dans l'état fondamental, sachez que le calcul durera deux fois plus longtemps. Vous pouvez aussi obtenir des sorties imprimante et/ou sur fichiers (ici symphony).

```
defdbl a-z
input "voulez vous un beau dessin (o/n)";repd$
if repd$=chr$(111) then drap3=1

input "voulez vous une sortie sur imprimante (o/n)";repi$
if repi$=chr$(111) then drap=1

input "voulez vous une sortie sur fichier (o/n)";repf$
if repf$=chr$(111) then
    drap2=1
    input "quel est le nom du fichier";nom$
    end if
        if drap2=1 then
            OPEN "C:\symp\"+ nom$ FOR OUTPUT AS #2
            end if
            OPEN "LPT1:" AS #1
PRINT #1, "*****"
        if drap=1 then
PRINT #1, "*****"
PRINT #1, D$, "HYDROGENE LIF 3 PHOTONS ** HLIF3HNU **"
PRINT #1, "*****"
        end if

        , *****
        ' QUELQUES DONNEES ET DEFINITIONS

    AC=1.01 'accroissement relatif de flux d'une isophote à l'autre
    ' NM= nombre d'isophotes
    ' B=f* theta/2
    ' A=f^2*theta/D, D diametre du faisceau non focalise
    DE=25 'coeff dependant de la largeur de la gaussienne radiale
    K1=3 'ordre d'interaction fonda->n=2 (3)
    K2=1 ' idem n=2-> ion
        , *****
```

'\*\*\*\*\*'

```
'
          LECTURE DES COEFFICIENTS DE L'ETUDE
10
INPUT "VALEUR DE P1?, PUISS DE S1-2, ex.-22 sigma de fond->n=2";p1
' ex: p1=-27
INPUT "VALEUR DE P2?, PUISS DE S2-ion, ex.0 sigma de n=2->ion";p2
' ex: p2=0
INPUT "VALEUR DE C1?, COEFF DE S1-2, 1 à 10" ;c1
' ex: c1=12
' INPUT "VALEUR DE C2?, COEFF DE S2-ion, 1 à 10" ;c2
c2=27
' INPUT "VALEUR DE LT?, DUREE DE VIE DE n=2 en seconde";lt
lt = 2e-9 's
INPUT "VALEUR DE P0?, pression d'atomes en torr";p0
' ex: p0=0.3e-4
INPUT "VALEUR DE E0?, ENERGIE LASER max mJ";E0
' INPUT "LARGEUR à 1/e DU PULSE, en s, ex:7 10-9";B2
b2=7e-9
' INPUT "DIAMETRE DU FAISCEAU non focalisé en mm";Dia
dia=4
' INPUT "DIVERGENCE DU FAISCEAU, ex 10-3 rad";div
div=.9E-3

INPUT "LONGUEUR FOCALÉ?, cm";F
' ex: F=40
INPUT "NOMBRE DE COUCHES ";NM
' ex: NM=420
PI = 3.141592654
FO= (E0*4.4e-11*1.61*DE)/(B2*pi*div*div*F*F)
cls
PRINT "*****"
PRINT "Intens Laser=";FO;"E+8 W/cm2", "Sigma1=";C1;"E";p1,
PRINT "Sigma2=";C2,"Durée de Vie=";LT;"s"
PRINT "Pression=";P0;"Torr", "largeur du pulse=";b2;"s"
PRINT "Diametre du faisceau ";dia,"divergence="div;
PRINT "rad", "focale=";f;"cm"
PRINT nm;"couches", " de=";de
input "vous êtes vous trompé";rap$
PRINT "*****"
if rap$=chr$(111) then goto 10
          *****

PRINT#1,"Intens Laser=";FO;"E+8 W/cm2",
PRINT#1,"Sigma1=";C1;"E";p1,"Sigma2=";C2,"Durée de Vie=";LT
PRINT#1,"Pression=";P0,"larg du pulse=";b2
PRINT#1,"Diametre du faisceau ";dia
PRINT#1,"divergence=";div;"rad", "focale=";f;"cm"
PRINT#1,nm;"couches", "de=";de
PRINT #1,"#####"
```

```

if drap2=1 then
PRINT#2, "Intens laser=";F0;"E+8 W/cm2", "Sigma1=";C1;"E";p1,
PRINT#2, "Sigma2=";C2, "Durée de Vie=";LT
PRINT#2, "Pression=";P0, "larg du pulse=";b2
PRINT#2, "Diametre du faisceau ";dia
PRINT#2, "divergence=";div;"rad", "focale=";f;"cm"
PRINT#2, nm;"couches"
end if

' *****
b=f*div/2
a=f*f*div/dia
PRINT #1, "a=";a, "b=";b; e0;"mJ", "ac=";ac
if drap2=1 then PRINT #2, "a=";a, "b=";b
PRINT "a=";a, "b=";b

' *****
' *****
' NORMALISATION

I1 =P1+(K1*8)
S1 =C1*10^I1
I2 =P2+(K2*8)
B1=1/B2
NO =P0*3.535E+16
S2 =C2*10^I2

' NORMALISATION TERMINEE
' *****

' *****
' CALCUL DU VOLUME

PI = 3.141592654
DIM VV(NM), DV(NM), FL(NM)
FV = (4/9)*PI*A*(B^2)*(1/DE)
FOR N = 0 TO (NM) 'N= numero de la couche,0 interieur
AL = AC^N
SA =(AL-1)^.5
IF N = 0 THEN 1530
VA = (AL +5)*SA-6*ATN(SA)
VV(N)=FV*VA 'volume total de l'isophote n
F1(N) = 1/(AC^(N-1))
DV(N) =VV(N)-VV(N-1)
GOTO 1540

1530 DV(N)=0
1540 if drap=1 then PRINT #1,N,VV(N),DV(N), (dv(n)*n0)
if n = nm then PRINT#1, "N=";n; "VV(N)=";vv(n); "al=";al
if n = nm then PRINT#1, "(dv(n)*n0)="; (dv(n)*n0)
if n = nm then PRINT "N=";n; "VV(N)=";vv(n); "f1=";f1(n)
if n = nm then PRINT "(dv(n)*n0)="; (dv(n)*n0)

NEXT N
'
CALCUL DU VOLUME FIN

```

```

,
*****
'*****
1234
DIM N11(nm),N12(nm),N13(nm),n21(nm),n22(nm),n23(nm)

T0=1E-08      'temps où I laser est max (s)
T1=1E-10      'increment de temps (s)
N12(1)=0      'nb d'atomes dans n=2
N13(1)=0      ' nb d'ions
las=0

FOR T=0 TO 2E-08 STEP T1

E1 = EXP(-B1*B1*(T-T0)^2) : las=e1

FOR N=1 TO NM
if T=0 then n11(n)=n0*dv(n)
F1(N) = 1/(AC^(N-1))
E =FL(N)*E1:fack1=6:fack2=1
F1 =((FO*E)^K1)*(1-1/(AC^K1))*(1/(K1*LOG(AC)))*fack1
F2 = ((FO*E)^K2)*(1-1/(AC^K2))*(1/(K2*LOG(AC)))*fack2

D1 =S1*F1*T1
D2 =S2*F2*T1

IF D2>1 THEN d2=1
if d1>1 then d1=1
N21(n)=N11(n)+n12(n)*d1
N22(n)=N12(n)+N21(n)*D1-(N12(n))*((T1/LT))-n12(n)*d1
N23(n)=N13(n)+N22(n)*D2
if (n=nm and (.9999999e-8<t and t<1.0000001e-8)) then
PRINT "t=";t;"n=";n;" n0*vv(n)=";n0*vv(n)
PRINT " n+(n)=";n23(n);"n+crees=";(n23(n)-n13(n))
PRINT "N=";n;" VV(N)=";vv(n);" f1=";f1(n)
end if
n21(n)=n21(n)-n22(n)+n12(n)
n22(n)= n22(n)-n22(n)*d2
PRINT n21(n),n22(n),n23(n),(n21(n)+n22(n)+n23(n))
M1=M1+N21(n) 'etat fond
M2=M2+N22(n) 'etat n=2
M3=M3+N23(n) 'etat ion
PRINT "T=";T;"H(O)=";M1;"H(*)=";M2;"H(+)=";M3;"las=";las
NEXT N

IF D2>1 THEN d2=1
IF d1>1 then d1=1

if m1>max1 then max1 = m1
if m2>max2 then max2 = m2
if m3>max3 then max3 = m3
if las>mlas then mlas=las
tot= (m1+ m2+m3)
if des=0 then PRINT "T=";T;"H(O)=";M1;"H(*)=";M2;"H(+)=";M3
if des=0 then PRINT"las=";las;"tot=",tot

```

```

PRINT "tot=";tot
if des=0 then
  int1=int1+m1 'etat fond
  int2=int2+m2 'etat n=2
  int3=int3+m3 'etat ion
end if
AX =AX +1
IF AX < (t0/t1)/400 THEN 1790
                                if (drap2=1 and des = 0) then
                                  PRINT #2, T,m1,M2,M3,E1
                                end if

if (drap=1 and des=0) then
  PRINT#1,"T=";T;" H(0) ="; M1;" H(*) =";M2
  PRINT#1," H(+) =";M3;"las="las
end if
  AX = 0
                                1790
                                if (des = 1 and drap3=1 ) then gosub dessin
for n=1 to nm
n11(n)=n21(n)
n12(n)=n22(n)
n13(n)=n23(n)
m1=0:m2=0:m3=0
next n
                                NEXT T

if (des=1 and t>=2e-8) then goto 4321
                                if (des =0 and drap3= 1) then
des=1
erase N11,N12,N13,n21,n22,n23
max1=n0*vv(nm)
if max3=0 then max3=0.001
if max2=0 then max2=0.001
screen 9
view (200,70)-(592,280),,13
draw "b l 230 " 'long fen=392 haut=210
goto 1234
                                end if

```

```

' *****
'                                     TRACE DES COURBES
' *****
if drap3><1 then goto fin

dessin:
dtu=((t*392)/(2e-8))+200
                                md21=(280-m2/(max2/120))-1
draw "m=" + varptr$(dtu) + ",=" + varptr$(md21) + "c4"

                                md11=(280-m1/(max1/150))
draw "bm=" + varptr$(dtu) + ",=" + varptr$(md11) + "c9"
draw "m=" + varptr$(dtu) + ",=" + varptr$(md11) + "c9"

                                md31=(280-m3/(max3/190))-3
draw "bm=" + varptr$(dtu) + ",=" + varptr$(md31) + "c10"
draw "m=" + varptr$(dtu) + ",=" + varptr$(md31) + "c10"

                                dflu=280-las/(mlas/170)
draw "bm=" + varptr$(dtu) + ",=" + varptr$(dflu) + "c11"
draw "m=" + varptr$(dtu) + ",=" + varptr$(dflu) + "c11"
draw "bm=" + varptr$(dtu) + ",=" + varptr$(md21) + "c4"
return

4321
PRINT " "
PRINT "n0="; n0; "H0="; max1; "H*="; max2; "H+="; max3; "L="; f0*1E+8
for d=1 to 19
PRINT " "
  next d
PRINT " "
|-----|-----|-----|-----|
PRINT "      0           0.5           1           1.5           2"
PRINT "      TEMPS*10+8 s "
PRINT " "
fin:

if drap2=1 then
CLOSE #2
end if
PRINT#1, "e="; e0; "n0="; n0; "H(0)="; max1; "H(*)="; max2
PRINT#1, "H(+)="; max3; "L="; f0*1E+8
PRINT "n0="; n0; "H(0)="; max1; "H(*)="; max2;
PRINT "H(+)="; max3; "L="; f0*1E+8; "f="; e0

END

```

## ii) Exemples de courbes

Ce programme permet aussi de visualiser l'évolution temporelle du nombre d'ions, d'états excités et d'atomes dans l'état fondamental. Nous donnons ici quelques exemples de ces courbes en notant toutefois qu'il conviendrait d'effectuer ces calculs avec un pas voisin de  $10^{-15}$ s pour être certain de reproduire correctement le comportement du nombre d'atomes excités .

Les calculs présentés sont effectués en considérant une focale de 20 cm, les résultats ont été "recalibrés" par souci de lisibilité (cf légendes), les valeurs des maxima des courbes sont cependant indiquées, l'impulsion laser est aussi figurée.

La première courbe (figure (36 a)) montre le résultat d'un calcul portant sur 600 couches, il s'agit de calculs menés à leur terme, c'est à dire que le volume considéré correspond à la définition du volume d'interaction.

Le nombre d'atomes dans l'état fondamental reste quasiment constant, i.e l'effet de saturation est très peu visible, ceci est dû au grand volume considéré: en fait la plus grande partie des ions sont créés dans une faible partie de ce volume, comme cela sera visible sur les prochaines courbes. Le nombre d'états excités suit l'évolution général de l'impulsion laser, en particulier son maximum coïncide avec le maximum de l'impulsion laser; lorsque l'énergie laser devient faible , le taux de perte de l'état excité est lui même faible , cela donne lieu à une dissymétrie de la courbe, dissymétrie qui serait d'autant plus grande que la durée de vie du niveau considéré serait grande.

Une autre courbe (figure 36 b)), reprend les mêmes calculs (énergie, focale) mais pour un nombre de couches plus faible, elle montre en quelque sorte ce qui se passe à l'intérieur du volume d'interaction. A une énergie laser de 12,25 mJ, l'effet de saturation devient visible: à la fin de l'impulsion laser, plus de la moitié des atomes présents dans le volume ( 100 fois plus petit



Laser = 12,25 mJ ; 600 couches

( $V=3E-3 \text{ cm}^3$ )

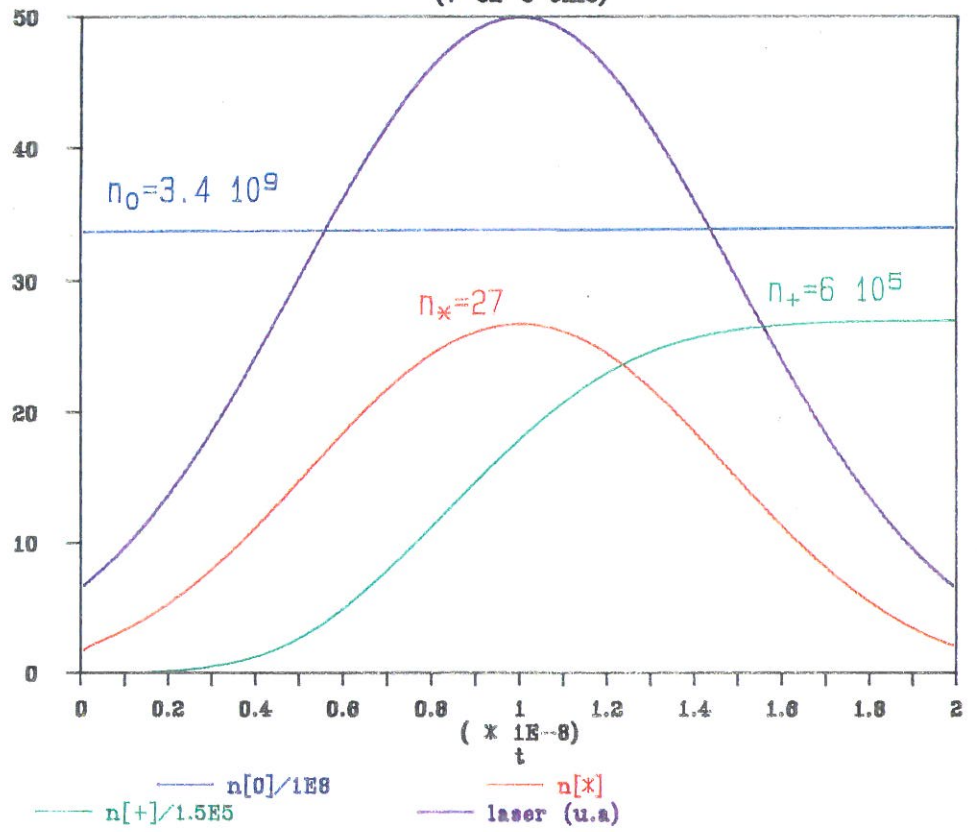


Figure n° 36 a)

Laser = 12,25 mJ ; 200 couches

( $V=0.7E-8 \text{ cm}^3$ )

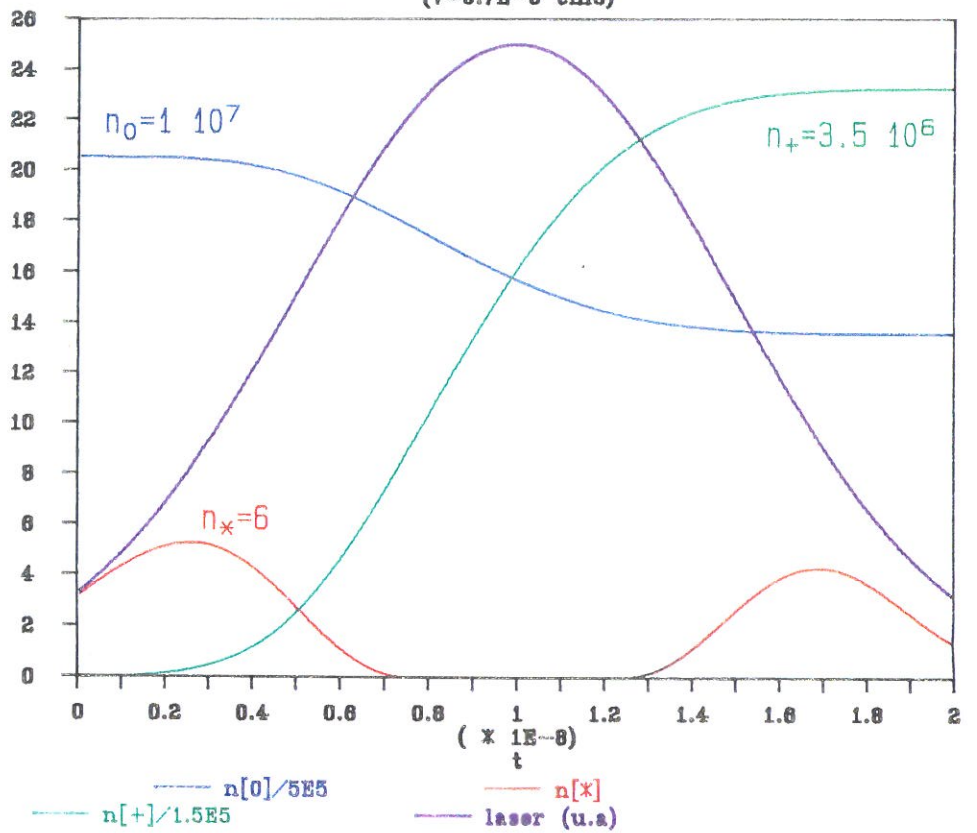


Figure n° 36 b)

que précédemment ) sont ionisés ; d'autre part, une comparaison avec la courbe précédente correspondant à la même énergie, montre que les trois quarts des ions sont déjà formés dans ce volume.

A l'intérieur du volume, l'évolution du nombre d'états excités est, elle, complètement différente: en fait dès que l'énergie laser est suffisante, tous les états excités sont ionisés dès qu'ils sont créés, le nombre d'états excités résultant peut donc être nul. La courbe obtenue (figure 37) à une énergie laser plus faible montre des résultats intermédiaires: l'effet de saturation est peu marqué, tandis que pour les états excités, la courbe montre un déficit au maximum de l'impulsion laser.

Il est ainsi possible de dire, en comparant avec les courbes précédentes, que contrairement aux ions, la majorité des états excités est présente aux "bords" du volume d'interaction, et que, d'autre part, à une puissance donnée, plus le volume considéré est "intérieur", plus les états excités sont confinés aux limites temporelles de l'impulsion laser.

Laser = 5 mJ ; 200 couches

( $V=9.7E-6$  cm<sup>3</sup>)

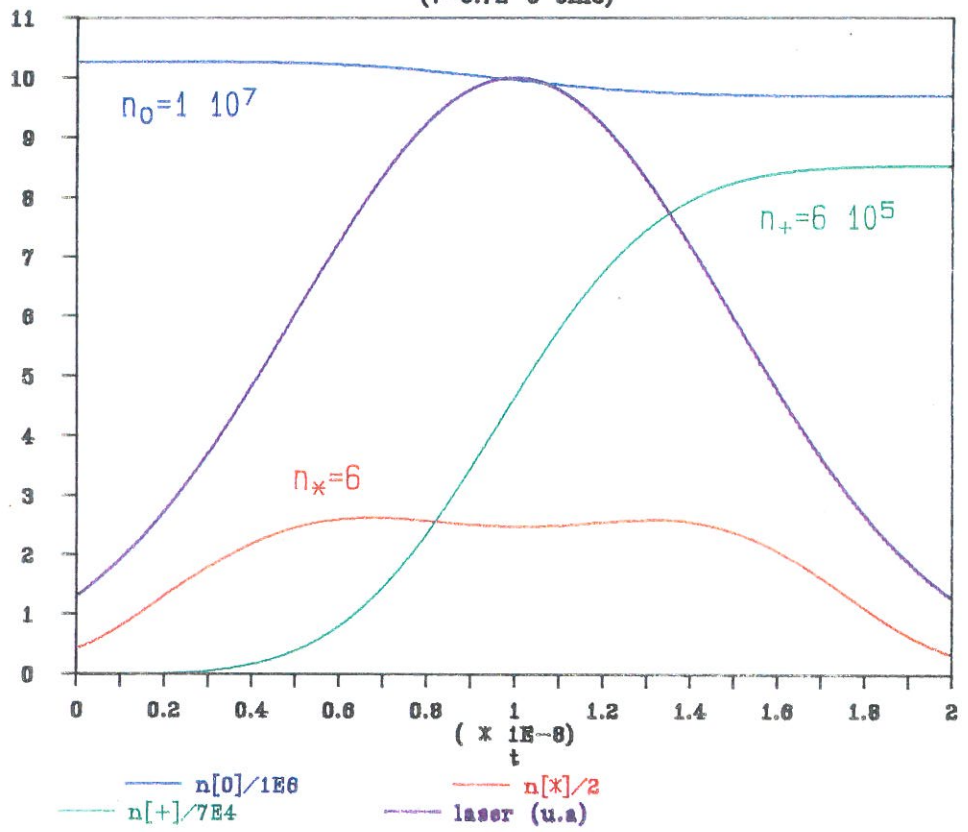


Figure n° 37



## CONCLUSION

## CONCLUSION

Une grande partie du travail présentée dans ce mémoire consiste en la réalisation d'une expérience de multiphotoionisation résonnante à (3+1) photons de l'hydrogène atomique, et à partir de celle ci, en une proposition de méthode permettant de déterminer les densités atomiques absolues. Cette méthode s'appuie sur une modélisation du "volume d'interaction".

Les principaux avantages de la technique expérimentale utilisée sont de façon générale celles des "techniques lasers": sélectivité (comparable à celles des techniques de spectroscopie classique), résolution spatiale et temporelle, méthode non perturbative.

La réalisation des mesures in situ au voisinage immédiat (qqes mm) de surfaces sera cependant limitée: une focalisation trop proche d'une surface induira des phénomènes perturbateurs tels les réflexions où l'ablation de matière.

La présence d'un "amplificateur incorporé" (amplification collisionnelle, induite par l'existence de la tension de collection), permet d'attendre une détection limite basse, voire très basse ( $<10^9 \text{ cm}^{-3}$ ), qui sera cependant dépendante de la puissance laser disponible.

Un grand avantage de la technique est aussi la "facilité" de la mise en oeuvre, j'entends que des précautions du type ultra-vide, par exemple, ne sont pas à prendre.

Le domaine d'application de cette technique est à priori assez large; développée ici en post-décharge, elle a été appliquée avec succès aux flammes. En décharge, les expériences sont plus délicates à mettre en oeuvre, des résultats ont cependant déjà été obtenus sur l'oxygène.

S'agissant de la méthode de détermination des densités atomiques absolues, le travail présenté n'est, en tout état de cause, qu'une première approche qui nécessitera des modifications pour améliorer la précision des mesures, je pense cependant que sa "viabilité" est démontrée. Des expériences sur un gaz (monoatomique de préférence) dont la pression partielle serait connue

constitueraient un bon test.

Les principales causes d'erreurs sont:

- l'imprécision quant au nombre d'ions créés, une meilleure connaissance des caractéristiques du système de détection devrait y remédier; les effets collisionnels semblent bien maîtrisés,

-le "choix" d'une géométrie de focalisation, un choix légèrement différent ne devrait pas avoir beaucoup d'influence, l'estimation de cette dernière nécessiterait cependant de réécrire les équations, en particulier celles des isophotes,

-l'imprécision sur la mesure de l'énergie laser peut être estimée à 10 %,

-mais c'est essentiellement sur la forme de l'impulsion laser que les incertitudes sont les plus grandes et ont le plus d'effet. En particulier, la puissance laser intervient, dans certaines étapes des calculs, à la puissance trois. Il faut noter cependant que ces incertitudes ont une incidence importante surtout sur la valeur de la section efficace d'excitation mais assez peu sur celle des densités absolues. Ainsi il a été vérifié qu'une erreur d'un facteur cinq sur la puissance laser maximale (par exemple due à la nature multimode du faisceau) entraîne une erreur sur  $\sigma_3$  d'un facteur 125, mais que la même pression partielle d'atomes permet un bon accord des calculs avec l'expérience, une fois introduites ces nouvelles valeurs de la puissance et de  $\sigma_3$ . Une analyse densitométrique de l'impulsion laser semble donc à cet égard indispensable, l'utilisation d'un laser réellement gaussien ou, à défaut, de dispositifs tels un homogénéiseur serait aussi très utile.

Enfin la conduite d'expériences où un signal de fluorescence serait enregistré en même temps que le signal de REMPI serait riche de renseignements, tandis que d'autres méthodes de mesures de densité (telle l'absorption VUV ou la titration), pourraient permettre de corroborer les résultats. S'agissant de la fluorescence, il est vraisemblable que des expériences menées à deux photons (soit 205 nm) devraient permettre de mettre en évidence ce signal.





REFERENCES

BIBLIOGRAPHIQUES

## BIBLIOGRAPHIE

- [1] a) Baravian G et Sultan G, Multiphoton ionisation of Oxygen, in Photophysics and photochemistry above 6 eV .(1985) 103. F Lahmani editor  
b) Bunkin F.V et Tugov I.I, Phys Rev A8 (1973) 601  
c) Lau A.M.F, Phys Rev A19 (1979) 1117  
d) Herzberg G, Molecular spectra and molecular structure, Van Nostrand, Princeton, (1945)
- [2] Mulliken R.S, Phys Rev 36 (1930) 611
- [3] Sharp T.E, Atomic Data 2 (1971) 119
- [4] a) Dabrowsky I et Herzberg G, Can J Phys 52 (1974) 1110  
b) Dabrowsky I, Can J Phys 62 (1984) 1639
- [5] Bonnie J, Multiphoton Ionisation for Hydrogen Plasma Diagnostics, Thèse Amsterdam (1987)
- [6] a) Kelleher D.E, Ligare M et Brewer L.R, Phys Rev A31 (1985) 2747  
b) Brewer R.L ,Buchinger F, Ligare M et Kelleher D.E, Phys Rev A39 (1989) 3912  
c) Gontier Y, Rahman N.K et Trahin M, Phys Rev A37 (1988) 4694  
d) Gontier Y et Trahin M, Phys Rev A19, (1979) 264
- [7] Zoller P, J Phys B 15 (1982) 2911
- [8] Baravian G, Jolly J, Persuy P et Sultan G, Chem Phys Lett 159 (1989) 361
- [9] Baravian G et Sultan G, Physica 128C (1985) 343
- [10] Benattar R et Sultan G, J App Phys 45 (1974) 4539
- [11] a) Speiser S et Jortner J, Chem Phys Lett 44 (1976) 399  
b) Weyl G.M, J Phys D12 (1979) 33
- [12] Hanazaki I, App Phys B 26 (1981) 111
- [13] Baravian G, Godart J et Sultan G, Phys Rev A25 (1982) 1483
- [14] Lompré L.A, Mainfray G et Manus C, J Phys B 13 (1980) 85 et 1799
- [15] Morgan C.G, Rep Prog Phys 38 (1975) 621
- [16] Drawin H.W et Dubreuil B, Physica C 83 (1976) 321

- [17] a) Arutyunyan I.N, Askaryan G.A et Pogosyan V.A, Sov Phy JETP 31 (1970) 548  
 b) Cervenán M.R et Isenor N.R, Opt Comm 13 (1975) 175  
 c) Fuss, Appl Phys 12 (1977) 265  
 d) Speiser S et Kimel S, Chem Phys Lett 7 (1970) 19
- [18] Wiese W.L, Smith M.W, Glennon B.M, Atomic Transition Probabilities, NSRDS, NBS4 (1966)
- [19] a) Laser Photoionisation Spectroscopy, Academic Press Inc (1987) Orlando USA  
 b) D.L Book Plasma Physics Division Naval Research Laboratory Washington D.C 20375 ( Plasma Formulary )
- [20] a) Mollow B.R, Phys Rev 175 (1968) 1555  
 b) Agarwal G.S, Phys Rev A1 (1970) 1445  
 c) Lecompte C, Mainfray G, Manus C et Sanchez F, Phys Rev Lett 32 (1974) 265 265  
 d) Lecompte C, Mainfray G, Manus C et Sanchez F, Phys Rev A11 (1975) 1009
- [21] a) Glauber R.J, Phys Rev 130 (1963) 2529  
 b) Glauber R.J, Phys Rev 131 (1963) 2766
- [22] Agostini P, Barjot G, Mainfray G, Manus C et Thebault J IEEE J of Quant Elect QE6 (1970) 782
- [23] Dixit S.N et Lambropoulos P, Phys Rev A21 (1980) 168
- [24] Badereu E, Popescu I, Gaz ionisés (1965) 18 ed Dunot
- [25] Rose D.J, Phys Rev 104 (1956) 273
- [26] Kontoleon N, Lucas J et Virr L.E, J Phys D 5 (1972) 956  
 (voir aussi Brunet H et Vincent P, J Appl Phys 50 (1979) 4700
- [27] Muller H.G, van Linden van den Heuvell H.B et van der Wiel M.J, Phys Rev A34 (1986) 236
- [28] a) Bebb H.B et Gold A, Phys Rev 143 (1966) 143  
 b) Basile S, Trombetta F, Ferrante G, Burlon R and Leone C, Phys Rev A37 (1988) 1050  
 c) Fain B, Boeglin A et Lin S.H, J Chem Phys 88 (1988) 7559  
 d) Gontier Y et Trahin M, Phys Rev A4 (1971) 1896  
 (cf Phys Rev A14 (1976) 1935 et Heno Y, Maquet A et Schwartz R, *ibid* 1931)

- e)Gontier Y et Trahin M, Phys Rev 172 (1968) 83 (cf Zernik  
W, Phys Rev 176 (1968) 420)
- [29] Ritchie C, Phys Rev A14, (1976) 726
- [30] Keldysh L.V, Sov Phys JETP 20 (1965) 1307
- [31] Touzeau M, Thèse (1978) Orsay
- [32] Ricard A, Thèse (1971) Toulouse
- [33] Gousset G, communication personnelle