

THÈSE

PRÉSENTÉE À L'UNIVERSITÉ DE PARIS-SUD

CENTRE D'ORSAY

PAR

Suzanne LACROIX

LABORATOIRE AIMÉ COTTON

C. N. R. S.

POUR OBTENIR

le titre de DOCTEUR de troisième cycle

SPECIALITÉ

Physique Atomique

Application spectroscopique des résonances de modulation
obtenues par excitation monochromatique d'un jet atomique.

SOUTENUE LE 27.1.76 DEVANT LA COMMISSION D'EXAMEN

M. P. JACQUINOT : Président

MM. P. BOUCHARÉINE
B. DECOMPS
S. FENEUILLE
J. PINARD } Examineurs

TABLE DES MATIERES

<u>INTRODUCTION</u>	1
<u>CHAPITRE I</u> - MODULATION EN EXCITATION EN BANDE LARGE ET MODULATION EN EXCITATION MONOCHROMATIQUE	3
<u>CHAPITRE II</u> - APPROCHE THEORIQUE DU PROBLEME DE MODULATION EN EXCITATION MONOCHROMATIQUE	8
A - LE MODELE	9
I - Résolution des équations de Bloch optiques du système en champ faible	10
II - Taux de modulation de l'intensité du signal de fluorescence	13
B - L'ATOME DE SODIUM	18
I - Détection "en π " et détection "en σ "	22
II - Influence de la structure du niveau fondamental	23
III - Modulation sur la raie D_1 du sodium	26
1°) Taux de modulation de I_{π_1}	27
2°) Taux de modulation de I_{π_2}	30
IV - Modulation sur la raie D_2 du sodium	32

CHAPITRE III - ETUDE EXPERIMENTALE DES RESONANCES DE

MODULATION EN EXCITATION MONOCHROMATIQUE	37
A - ETUDE EXPERIMENTALE SUR LES	
RAIES D_1 ET D_2 DU SODIUM	38
I - Dispositif expérimental	38
1°) Le jet	38
2°) Dispositif d'excitation	38
3°) Dispositif de détection	43
II - Résultats expérimentaux	45
1°) Détection à l'oscilloscope	47
2°) Détection synchrone à portes	48
B - AMELIORATIONS DU DISPOSITIF	
EXPERIMENTAL	50
CONCLUSION	56
BIBLIOGRAPHIE	58

INTRODUCTION

L'avènement du laser a permis un essor considérable des méthodes de spectroscopie sans effet Doppler. Il faut distinguer, toutefois, les techniques pour lesquelles le laser est un outil indispensable de celles qui sont seulement facilitées par l'emploi du laser. Dans le premier cas, la monochromaticité du faisceau laser est le plus souvent un caractère essentiel ; dans le second cas, on est intéressé par sa puissance et le laser est seulement utilisé comme une "super-lampe".

Quelles que soient les qualités du laser pour lesquelles on l'utilise, cohérence, puissance ou monochromaticité, il s'avère que, la plupart du temps, il apparaît des effets spécifiques de l'excitation par un laser, c'est-à-dire des effets qu'on n'observe pas lorsqu'on excite les atomes par une source classique de grande largeur spectrale.

Le travail que nous présentons ici s'insère parmi les expériences d'excitation en lumière modulée (encore appelées "expériences de modulation"). Elles appartiennent typiquement au domaine de la spectroscopie sans effet Doppler où l'on utilise une vapeur excitée par une source classique. Aussi les études antérieures à celle-ci ont-elles

été faites pour une "bande large" *. Et le laser pour ce type d'expérience n'apparaît que comme un outil commode, ne serait-ce qu'à cause des caractéristiques géométriques de son faisceau.

Dans ce contexte, nous nous sommes proposés de mettre en évidence les changements qu'apporte à faible puissance l'emploi du laser dans ce cas particulier.

Après avoir rappelé, dans le premier chapitre, les expériences de modulation antérieures à ce travail, nous consacrons un chapitre à la description théorique du phénomène. Le troisième chapitre, d'une part, retrace la façon dont on peut mettre en évidence expérimentalement les effets prévus et, d'autre part, il montre qu'une mesure de constante de structure hyperfine peut être envisagée par une méthode de modulation et étend ainsi le domaine d'application de ce type de spectroscopie qui n'a été utilisée jusqu'à présent que pour l'étude des structures Zeeman.

* Tout au long du présent travail nous abrégeons "source de grande largeur spectrale" par "bande large".

CHAPITRE I

MODULATION EN EXCITATION EN BANDE LARGE
ET MODULATION EN EXCITATION MONOCHROMATIQUE

Depuis l'expérience de double résonance (BROSSEL et BITTER 1952 [1]) les méthodes d'étude de la fluorescence résonnante d'une vapeur, qui s'affranchissent de l'élargissement Doppler, n'ont cessé de se développer : celles de modulation et de battements quantiques sont parmi les dernières nées.

L'idée qui sous-tend ces deux méthodes est la même : il s'agit d'induire une certaine cohérence entre les niveaux fins, ou sous-niveaux hyperfins, ou encore sous-niveaux Zeeman, excités des atomes et d'observer l'effet de cette cohérence sur la lumière de fluorescence.

Pour créer cette cohérence, il faut que les composantes spectrales de la lumière excitatrice qui entrent en résonance avec les transitions atomiques correspondantes soient elles-mêmes cohérentes. Autrement dit, il faut que l'intensité de la lumière excitatrice dépende du temps ; c'est par le type de dépendance en fonction du temps que se distinguent les deux méthodes. Dans les deux cas, toutefois, l'effet sur la lumière de fluorescence est de faire apparaître une modulation dont les fréquences, à la résonance, sont caractéristiques de la structure du multiplet.

Dans le cas de la modulation, on excite les atomes en bande large par la lumière d'une source classique * dont l'intensité est modulée. On s'intéresse alors au régime permanent du système.

Dans le cas des battements quantiques on excite les atomes par une impulsion dont la largeur spectrale couvre la structure à étudier. On s'intéresse alors à l'évolution du système au cours du temps (régime transitoire) ce qui vaut à cette méthode d'être classée parmi celles de spectroscopie résolue dans le temps [3].

Pour ce type d'expériences, qu'il s'agisse de la modulation ou des battements quantiques, l'emploi du laser n'est pas indispensable. Il permet toutefois d'améliorer l'efficacité de l'excitation et d'étendre commodément la gamme des longueurs d'onde utilisables.

Il est intéressant de remarquer que l'emploi du laser ne modifie aucunement le phénomène des battements quantiques puisqu'il s'agit d'une libre évolution du système. Il n'en est pas de même lorsqu'on considère celui de la modulation pour lequel on a affaire à un régime forcé. Il existe toutefois en bande large une connection étroite

* Quelques expériences utilisent la lumière d'un laser multimode non asservi. Le laser fonctionnant ainsi est, dans certaines conditions, assimilable à une source de bande spectrale large [2].

entre les deux aspects transitoire et permanent qu'on peut voir de la façon suivante :

soit un système excité par une succession périodique d'impulsions, capables chacune d'induire des battements quantiques. Il est clair que si la période des impulsions coïncide avec un multiple de la période des battements, les oscillations de l'intensité créées par chaque impulsion sont en phase et leurs effets s'ajoutent ;

une autre façon de voir les choses est de décomposer l'intensité de la lumière excitatrice en série de Fourier : la résonance apparaît pour l'harmonique dont la fréquence est égale à la fréquence propre du système * . Ce type de raisonnement est valable pour toute variation périodique de l'intensité. En particulier si cette variation est sinusoidale, il n'y a résonance que si sa fréquence est égale à la fréquence propre du système.

La première expérience de ce type a été réalisée par ALEKSANDROV en 1963 [4]. Il s'agissait d'étudier la structure Zeeman du niveau $5s5p\ ^3P_1$ du cadmium. La lumière excitatrice était émise par une lampe à cadmium soumise à une décharge oscillante. Seuls les sous-niveaux $M_J = +1$ et $M_J = -1$ étaient excités par une polarisation perpendiculaire au champ magnétique.

* Pour simplifier, nous considérons ici un système n'ayant que deux niveaux excités. La fréquence propre correspond à leur intervalle.

L'étude théorique correspondante a été faite en 1964 par CORNEY et SERIES [5]. Ils ont repris l'expérience [6] sur la même structure ($5s5p\ ^3P_1$ du cadmium) mais sans polariser la lumière excitatrice de façon que les trois sous-niveaux Zeeman soient excités. La résonance sur le taux de modulation de la lumière de fluorescence apparaît lorsque la fréquence de la décharge est égale à la fréquence de Larmor des atomes excités dans le champ magnétique appliqué, ou au double de celle-ci. La résonance à la fréquence simple correspond à l'établissement d'une cohérence entre les états $M_J = 0$ et ± 1 ; celle à la fréquence double correspondant à une cohérence entre $M_J = +1$ et $M_J = -1$.

Plus récemment, la méthode a été employée pour étudier la molécule d'iode [2]. Celle-ci mettant en jeu de grandes valeurs de J , l'utilisation des opérateurs tensoriels est bien adaptée à ce problème. De plus l'utilisation de l'opérateur densité conduit à une étude théorique formellement assez différente de celle de la référence [5].

En excitation en bande large, il importe peu que les atomes soient au repos ou en mouvement dans une vapeur, à condition que l'on puisse ne pas tenir compte des effets de collision : l'état interne de l'atome et sa vitesse ne sont pas corrélés. Aussi les expériences relatées plus haut ont-elles été réalisées sur des vapeurs atomique ou moléculaire.

Si, par contre, on désire étudier les effets spécifiques d'une excitation monochromatique * , on est conduit à travailler avec des atomes de vitesse donnée, par exemple dans un jet. Une telle expérience ne trouve pas sa contrepartie dans une expérience de battements quantiques puisqu'il est impossible de réunir les conditions de monochromaticité et de durée limitée de l'excitation. Dans quelle mesure diffère-t-elle d'une expérience de modulation en bande large ?

Ce problème que nous nous sommes posés principalement sur le plan de la théorie est étudié concrètement sur une structure connue ; le laser dont nous disposons étant un laser accordable à rhodamine 6G, nous avons choisi de faire cette étude sur la structure hyperfine des niveaux $3p \ ^2P_{1/2}$ et $3p \ ^2P_{3/2}$ du sodium 23, ce qui correspond au doublet de raies D_1 et D_2 pour lequel la rhodamine 6G est un colorant bien adapté.

* En ce qui concerne les expériences de modulation, nous employons par abus de langage "excitation monochromatique" pour désigner une excitation, soit par un laser monomode dont l'intensité est modulée, soit par deux lasers monomodes cohérents.

CHAPITRE II

APPROCHE THEORIQUE DU PROBLEME DE MODULATION
EN EXCITATION MONOCHROMATIQUE

Ce chapitre est une approche théorique du problème.

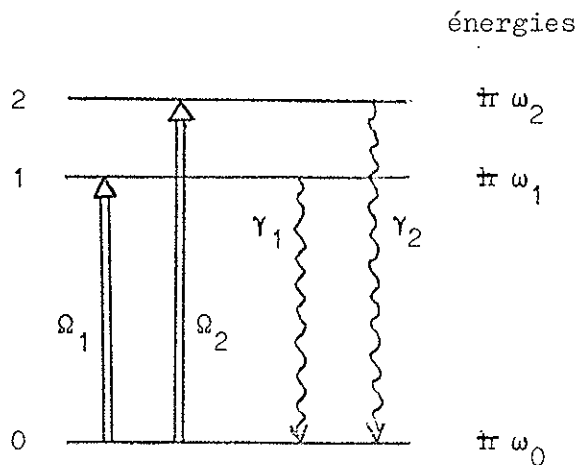
Dans un premier temps, nous nous contentons d'un calcul simplifié sur un atome à trois niveaux non dégénérés : un niveau fondamental et deux niveaux excités par deux radiations monochromatiques cohérentes quasi-résonnantes de faible puissance. On étudie dans ces conditions le taux de modulation de la lumière de fluorescence émise par cet atome.

La deuxième partie est une extension de ces calculs au cas de l'atome de sodium et plus particulièrement l'étude de la structure hyperfine des niveaux $3p \ ^2P_{1/2}$ et $3p \ ^2P_{3/2}$.

A. LE MODELE.

Le système le plus simple qu'on puisse imaginer pour observer la modulation de la lumière de fluorescence est le suivant : un atome à trois niveaux 0, 1 et 2 couplé avec deux champs cohérents Ω_1 et Ω_2 .

Les parités des niveaux sont telles que les transitions dipolaires électriques $0 \leftrightarrow 1$ et $0 \leftrightarrow 2$ soient permises et $1 \leftrightarrow 2$ interdite. On appelle γ_1 et γ_2 les constantes de désexcitation des niveaux 1 et 2 ; les champs Ω_1 et Ω_2 sont quasi-résonnants respectivement pour les transitions $0 \leftrightarrow 1$ et $0 \leftrightarrow 2$. Le schéma correspondant est le suivant :



Il s'agit d'un cas idéal, mais qui nous servira néanmoins de modèle pour l'étude des cas réels.

Le calcul consiste à résoudre les équations de Bloch optiques du système en se limitant à une excitation à faible puissance. Des éléments de la matrice densité ainsi obtenus, on déduit l'intensité de la fluorescence émise par les atomes et son taux de modulation.

I. RESOLUTION DES EQUATIONS DE BLOCH OPTIQUES DU SYSTEME EN CHAMP FAIBLE.

On peut décrire l'évolution du système atomique soumis à un champ $\vec{E}(t) = E(t)\vec{e}$ par les équations de Bloch optiques

$$\frac{d\sigma}{dt} = \dot{\sigma} = \sum_{i=1,2} \gamma_i [R_-^i \sigma R_+^i - \frac{1}{2} R_+^i R_-^i \sigma - \frac{1}{2} \sigma R_+^i R_-^i] - \frac{i}{\hbar} [\vec{P} \vec{E}, \sigma]$$

où les premiers termes décrivent l'émission spontanée [7].

σ est l'opérateur densité atomique,

R_+^i et R_-^i les projecteurs $|i\rangle\langle 0|$ et $|0\rangle\langle i|$ et \vec{P} le moment dipolaire atomique. Soit en notant l'élément de matrice $\pi P^{jk} = \langle j | \vec{P} \vec{e} | k \rangle$:

$$\begin{aligned} \dot{\sigma}_{00} &= \gamma_1 \sigma_{11} + \gamma_2 \sigma_{22} + i \sigma_{10} P^{01} E(t) + i \sigma_{20} P^{02} E(t) \\ &\quad - i \sigma_{01} P^{10} E(t) - i \sigma_{02} P^{20} E(t) \\ \dot{\sigma}_{11} &= -\gamma_1 \sigma_{11} + i \sigma_{01} P^{10} E(t) - i \sigma_{10} P^{01} E(t) \\ \dot{\sigma}_{22} &= -\gamma_2 \sigma_{22} + i \sigma_{02} P^{20} E(t) - i \sigma_{20} P^{02} E(t) \\ \dot{\sigma}_{10} &= -\left(\frac{\gamma_1}{2} + i \omega_{10}\right) \sigma_{10} + i \sigma_{00} P^{10} E(t) - i \sigma_{11} P^{10} E(t) \\ &\quad - i \sigma_{12} P^{20} E(t) \\ \dot{\sigma}_{20} &= -\left(\frac{\gamma_2}{2} + i \omega_{20}\right) \sigma_{20} + i \sigma_{00} P^{20} E(t) - i \sigma_{22} P^{20} E(t) \\ &\quad - i \sigma_{21} P^{10} E(t) \\ \dot{\sigma}_{21} &= -\left(\frac{\gamma_1 + \gamma_2}{2} + i \omega_{21}\right) \sigma_{21} + i \sigma_{01} P^{20} E(t) - i \sigma_{20} P^{01} E(t) \end{aligned} \tag{A-1}$$

Le champ $E(t) = \varepsilon(t) + \varepsilon^*(t)$, avec $\varepsilon(t) = \varepsilon_1 e^{-i \Omega_1 t} + \varepsilon_2 e^{-i \Omega_2 t}$, est quasi-résonnant pour les transitions $0 \leftrightarrow 1$ et $0 \leftrightarrow 2$; c'est-à-dire que $\omega_{10} - \Omega_1 = \delta_1$ et $\omega_{20} - \Omega_2 = \delta_2$ sont des quantités petites devant ω_{21} , de l'ordre de grandeur de γ_1 et γ_2 .

Lorsqu'on fait l'approximation du champ tournant, c'est-à-dire lorsqu'on ne garde, dans chaque équation, que les termes qui oscillent aux fréquences les plus basses, la composante Ω_1 du champ a pour effet de faire osciller la cohérence σ_{10} à cette même fréquence, Ω_2 fait osciller σ_{20} ; σ_{21} , elle, oscille en $\Omega_2 - \Omega_1$ puisque les deux composantes du champ sont cohérentes.

Autrement dit, on cherche des solutions du système de la forme :

$$\begin{aligned} & \sigma_{00}, \sigma_{11} \text{ et } \sigma_{22} \text{ constantes} \\ & \sigma_{10} = \alpha_{10} e^{-i \Omega_1 t} \\ & \sigma_{20} = \alpha_{20} e^{-i \Omega_2 t} \\ & \sigma_{21} = \alpha_{21} e^{-i \Omega_{21} t} \quad \text{avec} \quad \Omega_{21} = \Omega_2 - \Omega_1 \end{aligned}$$

Le système d'équations différentielles se transforme en un système d'équations linéaires indépendantes du temps

$$\begin{aligned} 0 &= \gamma_1 \sigma_{11} + \gamma_2 \sigma_{22} + i \alpha_{10} P^{01} \varepsilon_1^* - i \alpha_{10}^* P^{10} \varepsilon_1 + i \alpha_{20} P^{02} \varepsilon_2^* - i \alpha_{20}^* P^{20} \varepsilon_2 \\ 0 &= -\gamma_1 \sigma_{11} + i \alpha_{10}^* P^{10} \varepsilon_1 - i \alpha_{10} P^{01} \varepsilon_1^* \\ 0 &= -\gamma_2 \sigma_{22} + i \alpha_{20}^* P^{20} \varepsilon_2 - i \alpha_{20} P^{02} \varepsilon_2^* \\ 0 &= -\left(\frac{\gamma_1}{2} + i \delta_1\right) \alpha_{10} + i \sigma_{00} P^{10} \varepsilon_1 - i \sigma_{11} P^{10} \varepsilon_1 - i \alpha_{21}^* P^{20} \varepsilon_2 \\ 0 &= -\left(\frac{\gamma_2}{2} + i \delta_2\right) \alpha_{20} + i \sigma_{00} P^{20} \varepsilon_2 - i \sigma_{22} P^{20} \varepsilon_2 - i \alpha_{21} P^{10} \varepsilon_1 \\ 0 &= -\left[\frac{\gamma_1 + \gamma_2}{2} + i \delta_{21}\right] \alpha_{21} + i \alpha_{10}^* P^{20} \varepsilon_2 - i \alpha_{20} P^{01} \varepsilon_1^* \end{aligned}$$

$$\text{avec } \delta_{21} = \delta_2 - \delta_1$$

(A-2)

La résolution de ce système est immédiate si l'on suppose que la densité du flux d'énergie incident est faible, c'est-à-dire si l'on se contente des termes d'ordre le plus bas en ϵ_1 et ϵ_2 . Dans cette approximation $\sigma_{00} = 1$ et σ_{11} , σ_{22} , σ_{21} sont en ϵ_1^2 , ϵ_2^2 et $\epsilon_1^* \epsilon_2$.

Des quatrième et cinquième équations on tire :

$$\alpha_{10} = \frac{i P^{10} \epsilon_1}{\frac{\gamma_1}{2} + i \delta_1} \quad \alpha_{20} = \frac{i P^{20} \epsilon_2}{\frac{\gamma_2}{2} + i \delta_2}$$

On en déduit les populations des niveaux supérieurs :

$$\left. \begin{array}{l} \sigma_{11} = \frac{4 |P^{10} \epsilon_1|^2}{\gamma_1 + 4 \delta_1^2} \quad \sigma_{22} = \frac{4 |P^{20} \epsilon_2|^2}{\gamma_2 + 4 \delta_2^2} \end{array} \right\} \text{(A-3)}$$

et la cohérence induite entre ces niveaux :

$$\sigma_{21} = \frac{4 P^{01} P^{20} \epsilon_1^* \epsilon_2}{(\gamma_2 + 2i \delta_2)(\gamma_1 - 2i \delta_1)} e^{-i \Omega_{21} t}$$

Contrairement à ce qui se passe pour une excitation en bande large - pour laquelle ce n'est vrai qu'en première approximation lorsque Ω_{21} et $\omega_{21} \gg \gamma_1$ et γ_2 - les populations sont constantes et seule la cohérence oscille à la fréquence de modulation Ω_{21} .

Par ailleurs, on voit clairement sur ces formules l'effet du désaccord de chacun des deux champs sur la cohérence et sur les populations. Cet effet n'existe évidemment pas en bande large : si l'on exclut la résonance $\Omega_{21} = 0$ sur la partie modulée des populations, la seule

résonance qui apparaisse est sur la cohérence pour $\Omega_{21} = \omega_{21}$ (et l'anti-résonance correspondante $\Omega_{21} = -\omega_{21}$ qu'on néglige lorsqu'on fait l'approximation du champ tournant).

II. TAUX DE MODULATION DE L'INTENSITE DU SIGNAL DE FLUORESCENCE.

Si l'on détecte la lumière de fluorescence avec une direction de polarisation \vec{e}_λ , son intensité est proportionnelle à $I = \text{Tr } \sigma D$, D étant l'opérateur de détection :

$$D = \vec{e}_\lambda \cdot \vec{P} |0\rangle \langle 0| \vec{P} \cdot \vec{e}_\lambda .$$

Les niveaux atomiques n'étant pas dégénérés, les éléments de matrice $\langle 1 | \vec{P} \cdot \vec{e}_\lambda | 0 \rangle$ et $\langle 2 | \vec{P} \cdot \vec{e}_\lambda | 0 \rangle$ sont indépendants de la polarisation et proportionnels respectivement à P^{10} et P^{20} définis dans le paragraphe AI .

$$I = \sigma_{11} |P^{10}|^2 + \sigma_{22} |P^{20}|^2 + \sigma_{21} P^{10} P^{02} + \sigma_{12} P^{20} P^{01}$$

(A-4)

Le taux de modulation défini par $\tau = \frac{I_{\max} - I_{\min}}{I_{\max} + I_{\min}}$ s'écrit :

$$\tau = \frac{2 |\sigma_{21} P^{10} P^{02}|}{\sigma_{11} |P^{10}|^2 + \sigma_{22} |P^{20}|^2}$$

Si l'on suppose pour simplifier que $|\varepsilon_1| = |\varepsilon_2|$, en remarquant que $|P^{10}|^2$ ($|P^{20}|^2$) est proportionnel à γ_1 (respectivement γ_2) le taux de modulation prend la forme :

$$\tau = \frac{(1 + 4 \delta_1^2/\gamma_1^2)^{\frac{1}{2}} (1 + 4 \delta_2^2/\gamma_2^2)^{\frac{1}{2}}}{1 + 2 \delta_1^2/\gamma_1^2 + 2 \delta_2^2/\gamma_2^2} \quad (\text{A-5})$$

Ce taux de modulation dépend des désaccords des deux champs δ_1 et δ_2 . Fixons alors l'un des champs Ω_1 par exemple sur la transition $0 \leftrightarrow 1$ ($\delta_1 \leq \gamma_1$) et faisons varier Ω_2 , c'est-à-dire δ_2/γ_2 . L'allure de la courbe de résonance dépend du désaccord δ_1/γ_1 du premier champ. Les courbes des figures 1, 2 et 3 (respectivement pour les valeurs $\delta_1/\gamma_1 = 0$, $\delta_1/\gamma_1 = 0,5$ et $\delta_1/\gamma_1 = 1$) montrent que pour $\delta_1/\gamma_1 \neq 0$ il apparaît deux résonances $\delta_2/\gamma_2 = \delta_1/\gamma_1$ et $\delta_2/\gamma_2 = -\delta_1/\gamma_1$.

La situation est tout à fait différente de celle d'une expérience de modulation en bande large à faible puissance pour laquelle, lorsque γ est négligeable devant la fréquence atomique ω_{21} et devant la fréquence de modulation de la lumière excitatrice Ω_{21} , le taux de modulation s'écrit :

$$\tau_{\text{B.L.}} = \frac{\sqrt{\gamma_1 \gamma_2}}{[(\gamma_1 + \gamma_2)^2 + 4 (\omega_{21} - \Omega_{21})^2]^{\frac{1}{2}}}$$

Ici n'apparaît qu'une seule résonance pour $\Omega_{21} = \omega_{21}$ où le taux de

modulation prend sa valeur maximum $\frac{\sqrt{\gamma_1 \gamma_2}}{\gamma_1 + \gamma_2}$.

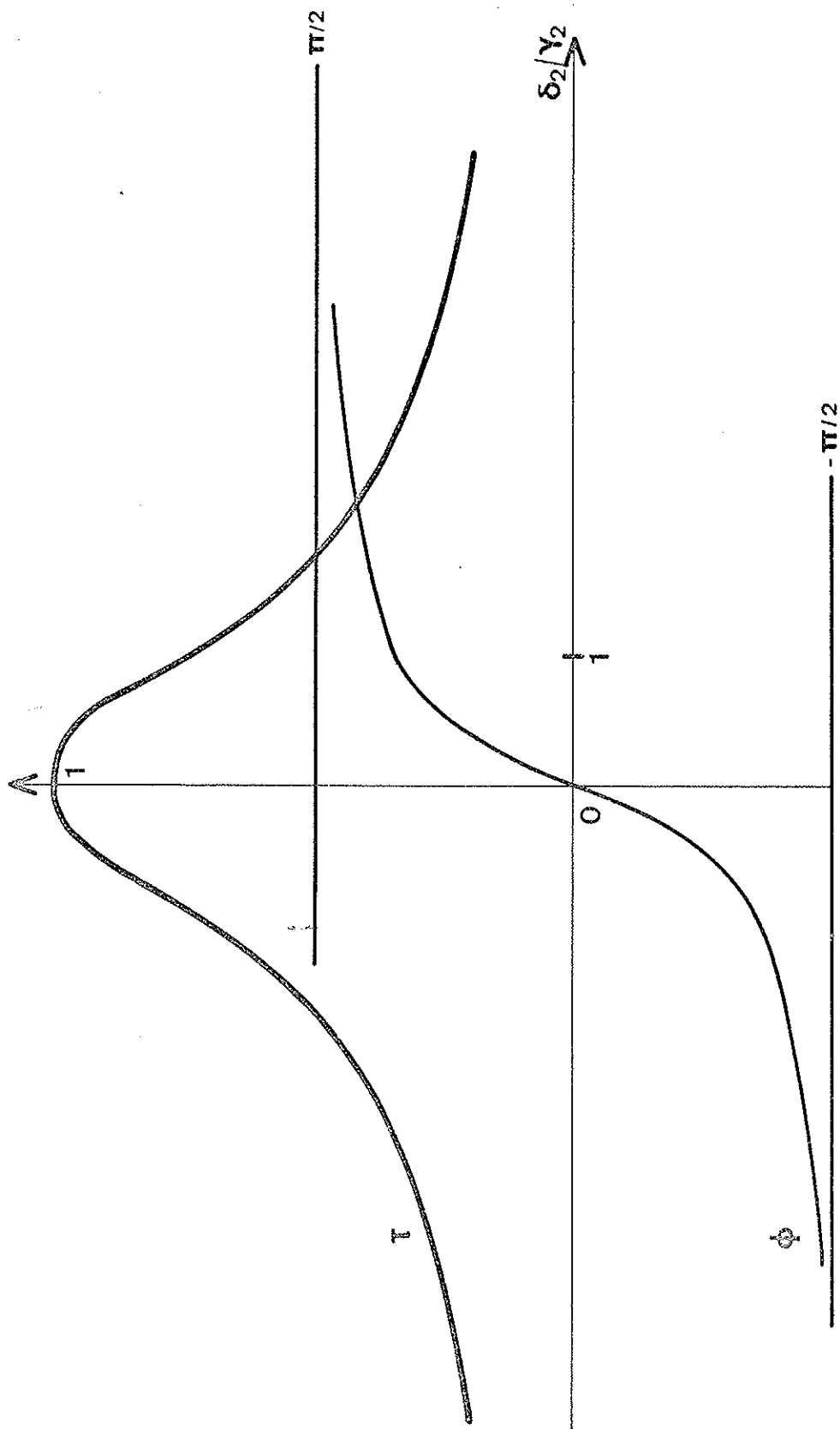


Figure 1 - Variations de τ et ϕ en fonction de δ_2/γ_2 ($\delta_1/\gamma_1 = 0$).

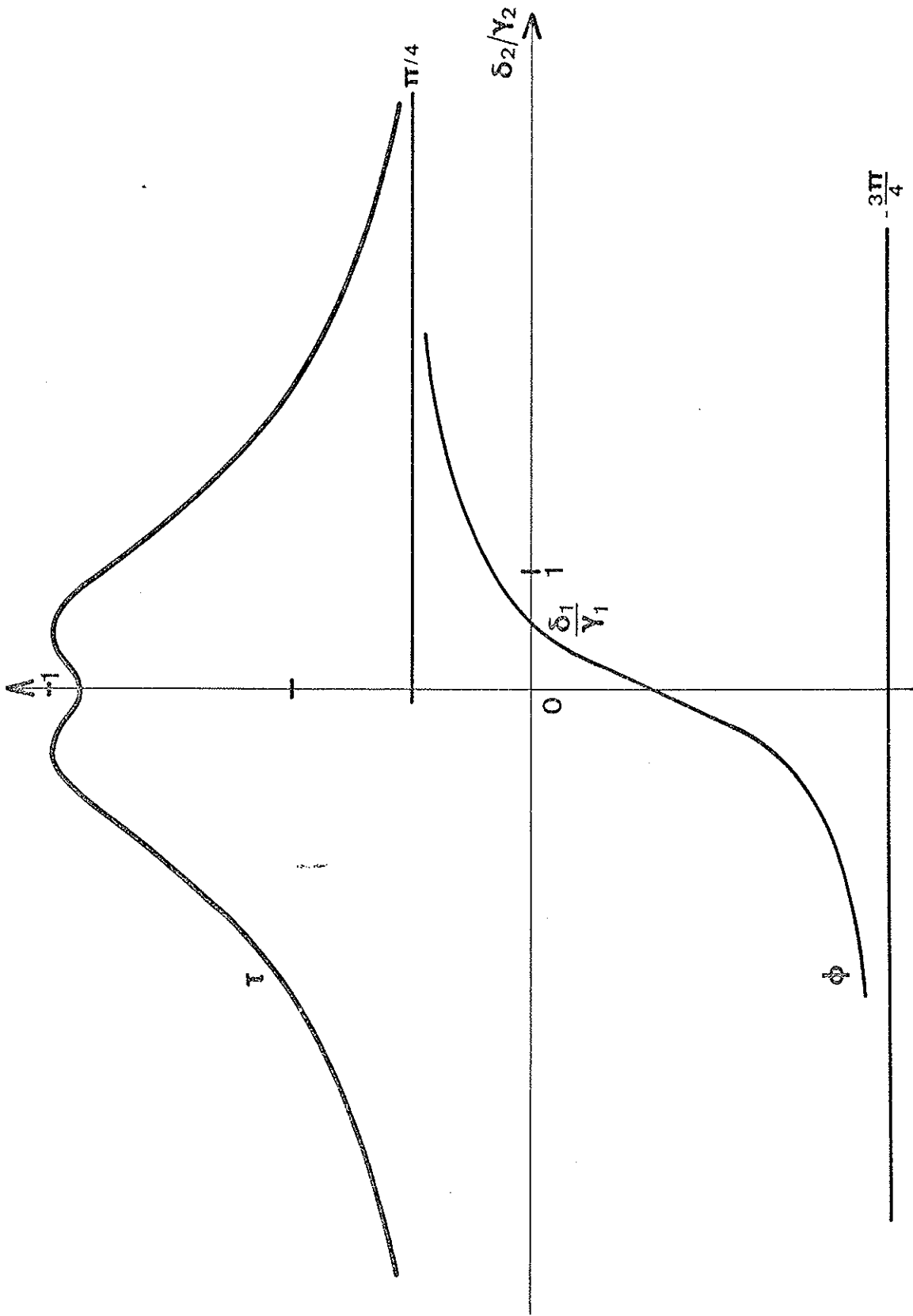


Figure 2 - Variations de τ et ϕ en fonction de δ_2/γ_2 ($\delta_1/\gamma_1 = 0,5$).

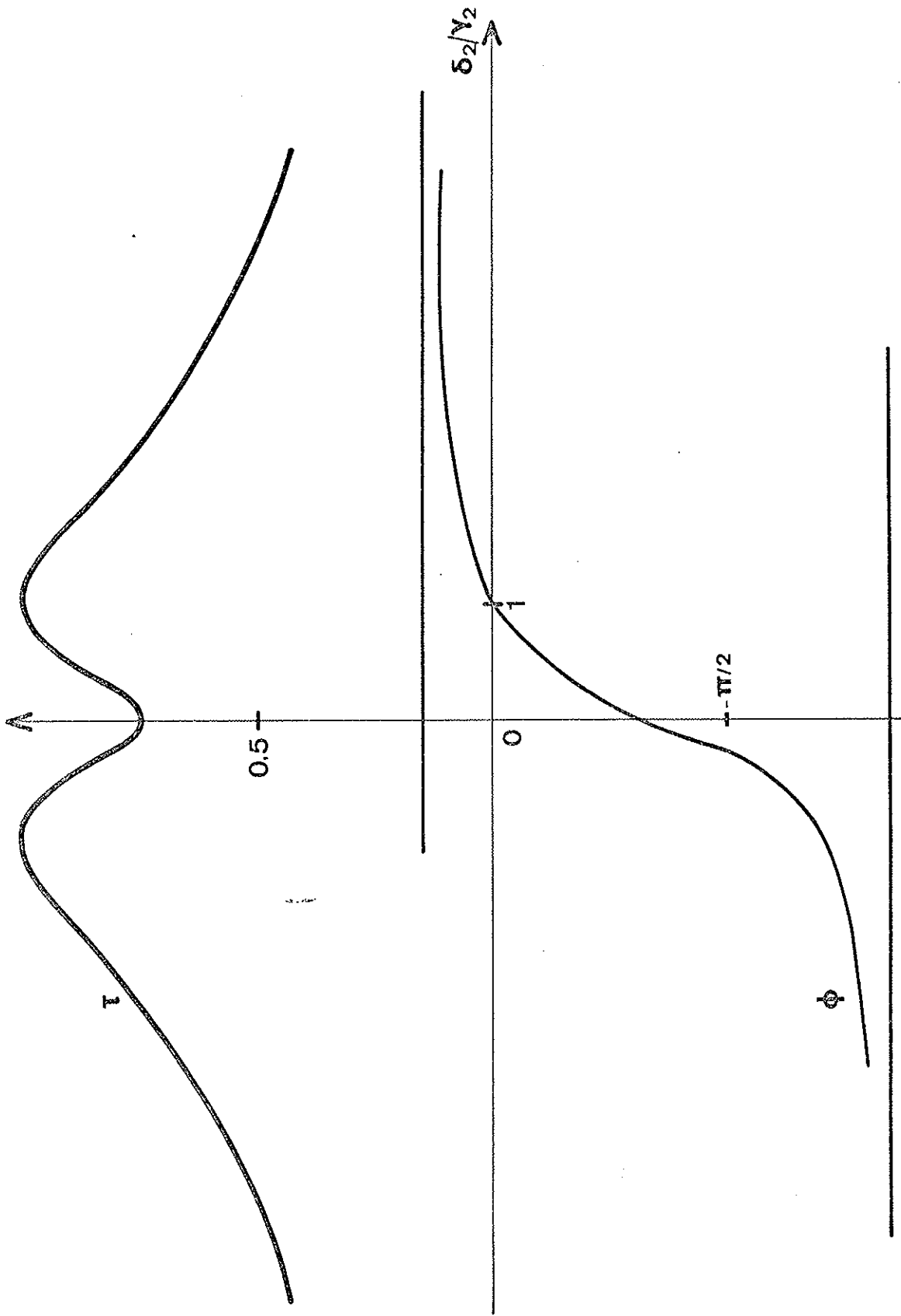


Figure 3 - Variations de τ et ϕ en fonction de δ_2/γ_2 ($\delta_1/\gamma_1 = 1$).

L'interprétation physique des résonances propres à l'excitation monochromatique est simple. Dans la mesure où l'on opère à faible puissance, les équations (A-2) sont équivalentes à celles de deux systèmes indépendants à deux niveaux 0 et 1, d'une part, et 0 et 2, d'autre part (sauf, bien sûr, en ce qui concerne l'établissement de la cohérence hertzienne σ_{21}). L'intensité de la lumière de fluorescence émise par le niveau 1 (respectivement 2) est proportionnelle à $\gamma_1 \sigma_{11}$ (respectivement $\gamma_2 \sigma_{22}$). C'est le phénomène d'interférences dû à la cohérence des deux sources qui est responsable de la modulation. Pour que le taux de cette modulation soit maximum et égal à un, il faut et il suffit que $\gamma_1 \sigma_{11} = \gamma_2 \sigma_{22}$. Soit, si l'on utilise les expressions (A-3) des popu-

$$\text{lations : } \frac{\delta_1^2}{\gamma_1} = \frac{\delta_2^2}{\gamma_2} .$$

[Il n'est pas possible de faire le même type de raisonnement pour une excitation en bande large. Les équations sont en effet écrites pour une bande large devant la structure du niveau excité de l'atome et il n'est pas possible de découpler les deux systèmes (0, 1) et (0, 2)].

Les deux résonances signalées plus haut n'apparaissent pas avec la même phase et ne jouent donc pas des rôles identiques comme on pourrait le supposer à partir de la seule donnée du taux de modulation. Il est nécessaire d'étudier le déphasage φ du signal de fluorescence par rapport au signal d'excitation :

$$I = \left[|P^{10}|^2 \sigma_{11} + |P^{20}|^2 \sigma_{22} \right] \left[1 + \tau \cos (\Omega_{21} t + \varphi) \right] .$$

L'identification des deux formules pour I (cf. équations A-4 et A-3) donne φ par :

$$\cos \varphi = \frac{1 + 4 \frac{\delta_1}{\gamma_1} \times \frac{\delta_2}{\gamma_2}}{\left[1 + 4 \left(\frac{\delta_1}{\gamma_1}\right)^2\right]^{\frac{1}{2}} \left[1 + 4 \left(\frac{\delta_2}{\gamma_2}\right)^2\right]^{\frac{1}{2}}}$$

$$\sin \varphi = \frac{2 \left(\frac{\delta_2}{\gamma_2} - \frac{\delta_1}{\gamma_1}\right)}{\left[1 + 4 \left(\frac{\delta_1}{\gamma_1}\right)^2\right]^{\frac{1}{2}} \left[1 + 4 \left(\frac{\delta_2}{\gamma_2}\right)^2\right]^{\frac{1}{2}}}$$
(A-6)

Nous constatons que seule la résonance $\frac{\delta_2}{\gamma_2} = + \frac{\delta_1}{\gamma_1}$ apparaît avec une phase nulle. Nous avons porté sur les figures 1, 2 et 3, qui donnent l'allure du taux de modulation, la variation correspondante de la phase.

Ce déphasage φ qui varie lorsque l'on balaye le champ Ω_2 est gênant lorsqu'on veut détecter le taux de modulation. Nous allons calculer, pour terminer ce paragraphe avant de passer au cas plus complexe de l'atome réel, un "pseudo-taux de modulation", quantité qui est effectivement enregistrée avec le type de détection utilisée (voir à ce propos le paragraphe A.I.3°) du chapitre consacré au montage expérimental). T est, en fait, obtenu à partir de la définition de τ en remplaçant I_{\max} et I_{\min} par la valeur moyenne de I encadrant un maximum et un minimum de I :

$$T = \frac{\int_{-\pi/2}^{+\pi/2} [1 + \tau \cos(\Omega_{21}t + \varphi)] d(\Omega_{21}t) - \int_{\pi/2}^{3\pi/2} [1 + \tau \cos(\Omega_{21}t + \varphi)] d(\Omega_{21}t)}{\int_{-\pi/2}^{+\pi/2} [1 + \tau \cos(\Omega_{21}t + \varphi)] d(\Omega_{21}t) + \int_{\pi/2}^{3\pi/2} [1 + \tau \cos(\Omega_{21}t + \varphi)] d(\Omega_{21}t)}$$

Ce calcul suppose que pendant une période $\frac{1}{\Omega_{21}}$, τ ne varie pas - autrement dit que le balayage du champ variable est lent comparé à la fréquence Ω_{21} . On peut alors écrire

$$T = \frac{2}{\pi} \tau \cos \varphi = \frac{2}{\pi} \cdot \frac{1 + 4 \frac{\delta_1}{\gamma_1} \times \frac{\delta_2}{\gamma_2}}{1 + 2 \frac{\delta_1^2}{\gamma_1^2} + 2 \frac{\delta_2^2}{\gamma_2^2}} \quad . \quad (A-7)$$

L'allure de ce "pseudo-taux de modulation" est donnée par les courbes des figures 4, 5 et 6 pour les différents désaccords $\frac{\delta_1}{\gamma_1}$ (0, 0,5 et 1).

On constate que lorsque δ_1 s'annule T est une lorentzienne.

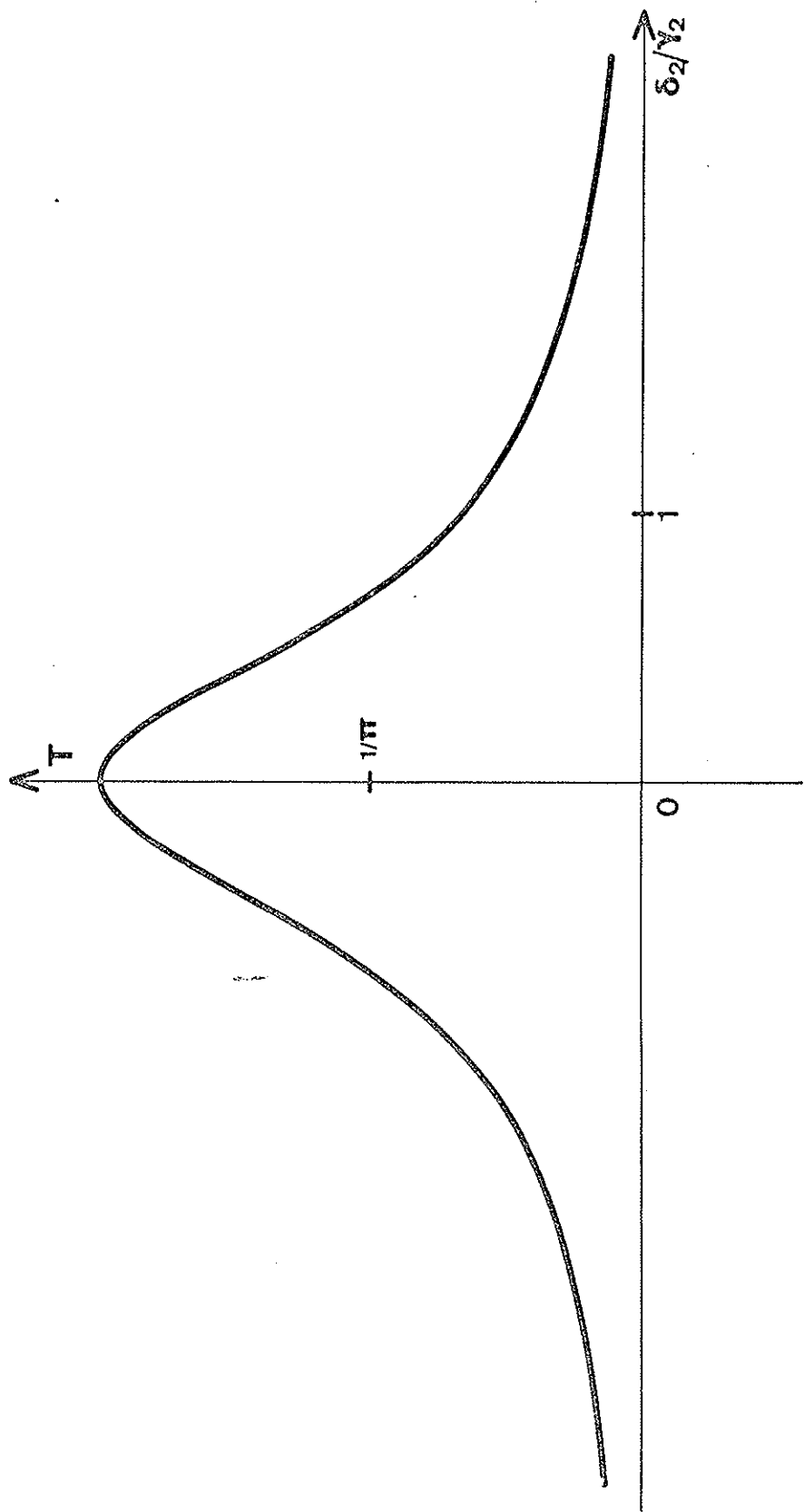


Figure 4 - Variations de T en fonction de δ_2/γ_2 ($\delta_1/\gamma_1 = 0$).

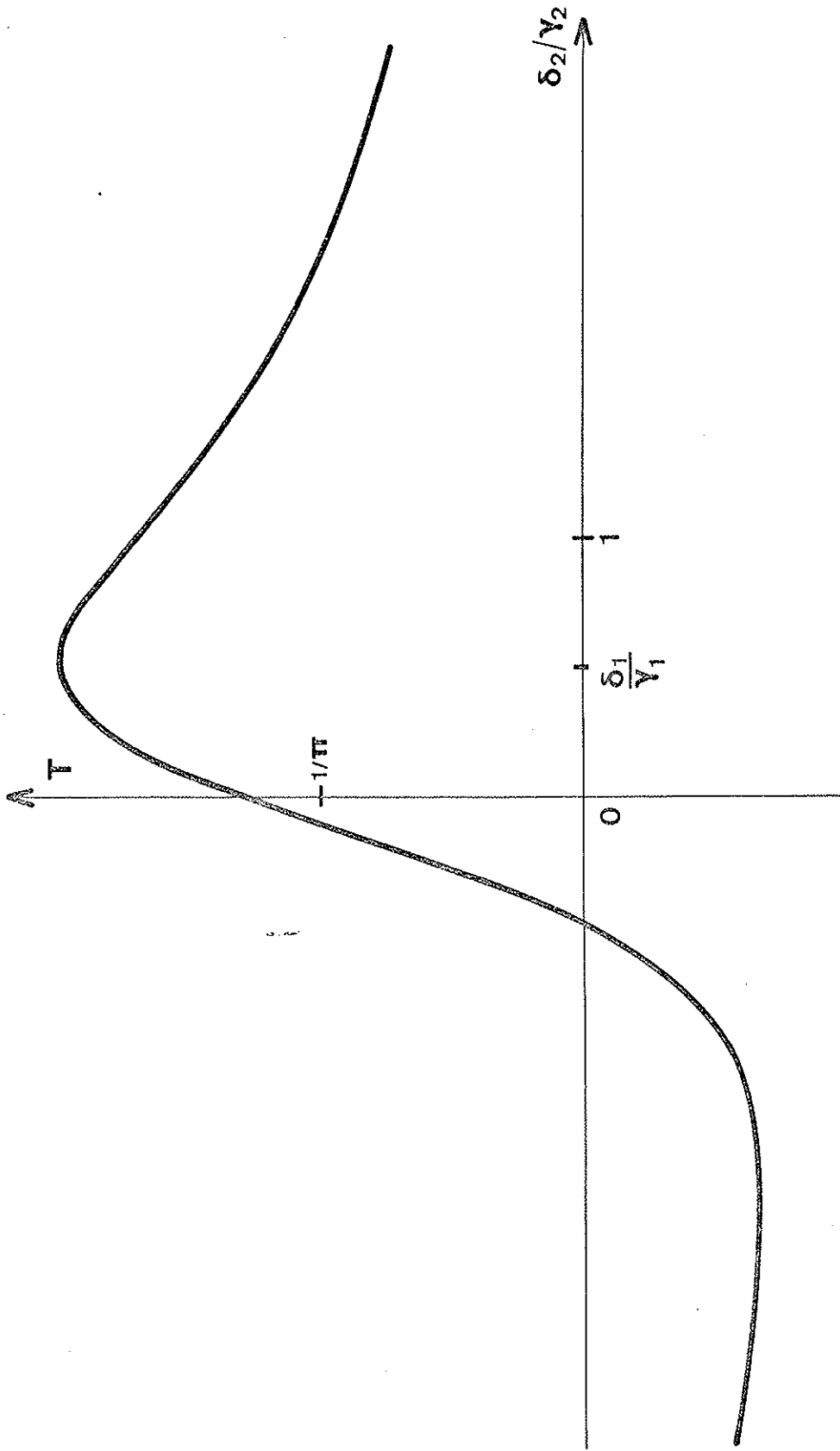


Figure 5 - Variations de T en fonction de δ_2/γ_2 ($\delta_1/\gamma_1 = 0,5$).

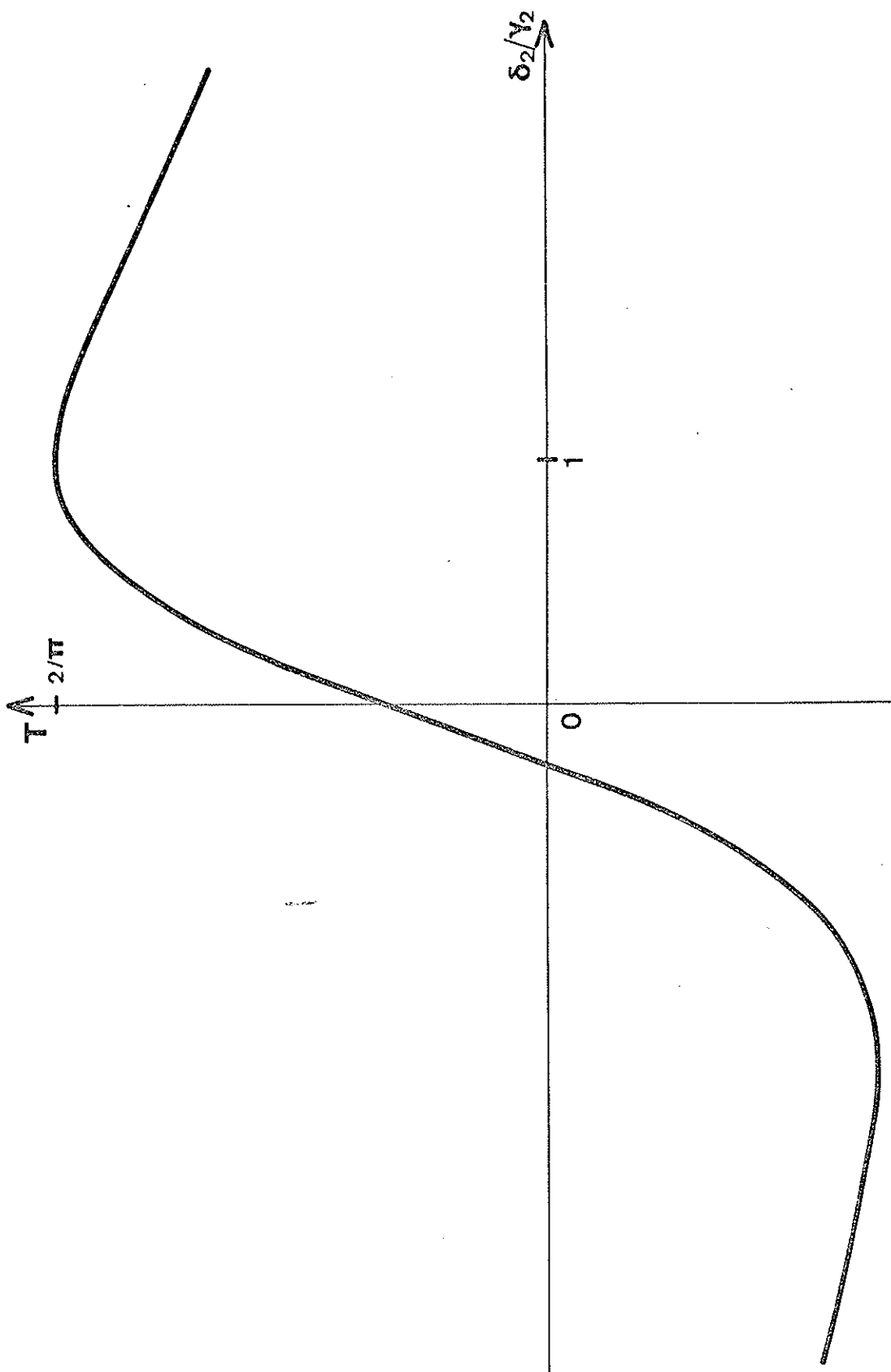
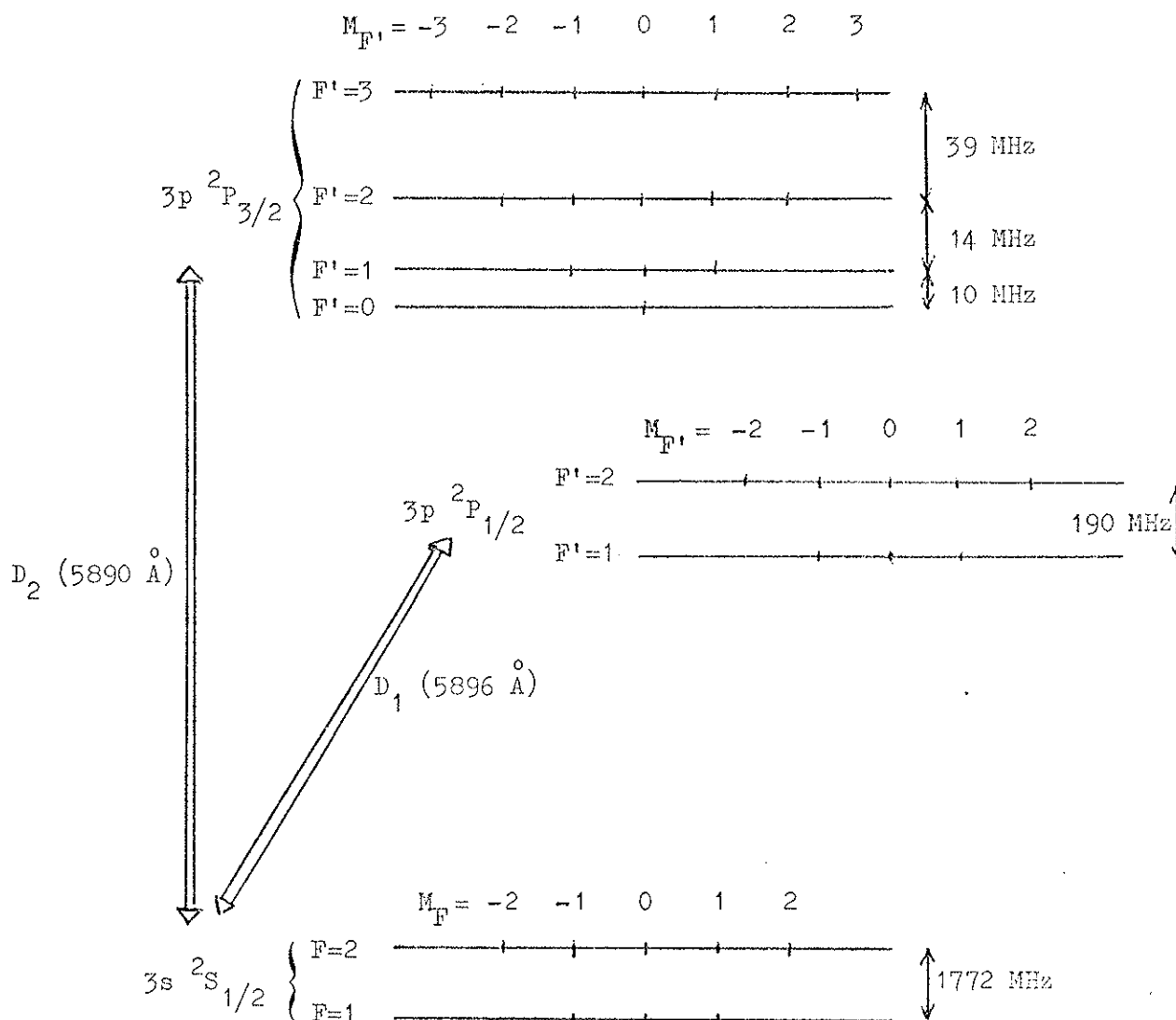


Figure 6 - Variations de T en fonction de δ_2/γ_2 ($\delta_1/\gamma_1 = 1$).

B. L'ATOME DE SODIUM.

L'expérience décrite sur le modèle à trois niveaux non dégénérés, peut être réalisée pour étudier la structure hyperfine d'un atome réel, pour lequel 0 serait le niveau fondamental et 1 et 2 deux niveaux hyperfins. L'atome que nous avons choisi est l'atome de sodium dont la configuration est $1s^2 2s^2 2p^6 3s$ dans l'état fondamental et $1s^2 2s^2 2p^6 3p$ dans l'état excité. Sa structure hyperfine peut être schématisée par le diagramme suivant ($I = 3/2$) :



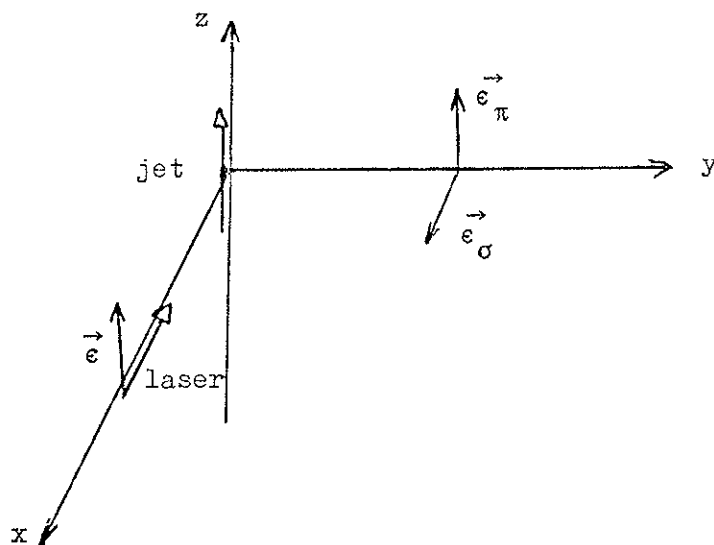
(les écarts relatifs des niveaux ne sont pas respectés).

Signalons tout de suite deux difficultés auxquelles nous allons nous heurter lors de l'adaptation du modèle au cas réel :

- Chaque sous-niveau hyperfin présente une dégénérescence d'ordre $2F+1$. Deux états $|\alpha_{FM}\rangle$ et $|\alpha_{FM}'\rangle$ ne jouent pas le même rôle dans la mesure où, d'une part le faisceau laser d'excitation est polarisé et, d'autre part l'observation de la fluorescence se fait dans une direction particulière et avec un polariseur.
- Le niveau fondamental est composé de deux sous-niveaux hyperfins. Toutefois, comme nous opérons en champ faible et sur un jet, nous négligeons tout effet de pompage optique qui pourrait apparaître à cause de cette structure.

Par ailleurs, l'écart entre ces deux sous-niveaux étant grand comparé aux structures des niveaux excités, il est possible de détecter la lumière de fluorescence sur l'un de ces sous-niveaux particuliers.

Pour fixer les idées, le dispositif expérimental se présente de la façon suivante :



Le jet d'atomes se propage le long de Oz .

Le faisceau laser se propage le long de Ox avec une polarisation parallèle à Oz .

Nous choisissons de détecter la fluorescence dans la direction Oy avec deux directions possibles de polarisation rectiligne :

\vec{e}_π parallèle à \vec{e} (d'où son nom)

\vec{e}_σ perpendiculaire à \vec{e} (donc parallèle à Ox).

Les deux modes de détection correspondants seront dits : détection "en π " et "en σ ".

Le calcul est calqué sur celui du paragraphe précédent. Il est largement simplifié par le choix de l'axe de quantification en coïncidence avec la direction de polarisation du faisceau incident.

On montre, en effet, sur le système d'équations de Bloch (dont nous n'écrivons pas le détail ici) qu'on peut trouver une solution, dans ces conditions, où les cohérences entre deux états de M différents sont nulles.

On note d'une façon générale :

$|\alpha_{FM}\rangle$ un état du niveau fondamental ($F=1$ ou 2)

$|\alpha'F'M'\rangle$ un état excité.

Si l'on choisit d'exciter les atomes à partir du sous-niveau F_0 , les deux composantes du champ $e^{-i\Omega_1 t}$ et $e^{-i\Omega_2 t}$ sont quasi-résonnantes respectivement pour les transitions

$$\begin{aligned} |\alpha F_0 M\rangle &\leftrightarrow |\alpha' F_1 M\rangle \\ |\alpha F_0 M\rangle &\leftrightarrow |\alpha' F_2 M\rangle . \end{aligned}$$

On suppose pour simplifier que $|\epsilon_1| = |\epsilon_2|$.

Le champ n'induisant que des transitions à M constant lorsqu'on travaille en polarisation linéaire et l'émission spontanée étant incapable d'induire des cohérences, le système dégénéré est équivalent, puisqu'on néglige le pompage optique, à $(2F_0+1)$ systèmes autonomes caractérisés par la valeur de M ($-F_0, -F_0+1, \dots, +F_0$). Pour chaque système individuel les solutions des équations de Bloch relatives au modèle sont valables à un facteur multiplicatif près : la population de l'état fondamental, c'est-à-dire le poids statistique de l'état $|\alpha F_0 M\rangle$.

En remarquant que les états $|\alpha' F_1 M\rangle$ et $|\alpha' F_2 M\rangle$ ont les mêmes durées de vie, on obtient :

$$\begin{aligned} \langle \alpha' F_1 M | \sigma | \alpha' F_1 M \rangle &= \frac{4 |\langle \alpha' F_1 M | \vec{P} \vec{\epsilon} | \alpha F_0 M \rangle|^2}{(2F_0+1) (\gamma^2 + 4\delta_1^2)} \\ \langle \alpha' F_2 M | \sigma | \alpha' F_2 M \rangle &= \frac{4 |\langle \alpha' F_2 M | \vec{P} \vec{\epsilon} | \alpha F_0 M \rangle|^2}{(2F_0+1) (\gamma^2 + 4\delta_2^2)} \quad (B-1) \\ \langle \alpha' F_2 M | \sigma | \alpha' F_1 M \rangle &= e^{-i\Omega_{21} t} \frac{4 \langle \alpha' F_2 M | \vec{P} \vec{\epsilon} | \alpha F_0 M \rangle \langle \alpha F_0 M | \vec{P} \vec{\epsilon} | \alpha' F_1 M \rangle}{(2F_0+1) (\gamma + 2i\delta_2) (\gamma - 2i\delta_1)} \end{aligned}$$

où $\vec{P} \vec{\epsilon} = \vec{P} \vec{e} \epsilon = P_z \epsilon$. Les éléments de matrice de cet opérateur sont,

d'après le théorème de Wigner-Eckart, proportionnels au même élément de matrice réduit, la dépendance en M ne se manifestant que sur le coefficient de proportionnalité sous la forme d'un symbole "3j".

Une dépendance en M apparaît également sur l'intensité de fluorescence et dépend de la polarisation de détection.

I. DETECTION "en π " et DETECTION "en σ ".

L'opérateur de détection de la lumière de fluorescence vers un sous-niveau hyperfin donné F avec un polariseur dans la direction \vec{e}_λ ($\lambda \equiv \pi$ ou σ) s'écrit :

$$D_{F\lambda} = \sum_M \vec{P} \cdot \vec{e}_\lambda |\alpha_{FM}\rangle \langle \alpha_{FM}| \vec{P} \cdot \vec{e}_\lambda .$$

L'intensité de la lumière de fluorescence correspondante est donnée par :

$$I_\lambda = \sum_{\substack{F'_1 F'_2 \\ M M'}} \langle \alpha' F'_1 M' | \sigma | \alpha' F'_2 M' \rangle \langle \alpha' F'_2 M' | \vec{P} \cdot \vec{e}_\lambda | \alpha_{FM} \rangle \langle \alpha_{FM} | \vec{P} \cdot \vec{e}_\lambda | \alpha' F'_1 M' \rangle$$

On montre d'une façon générale que $I_\pi + 2 I_\sigma$ n'est pas modulée. Ceci revient à montrer que $I_z + I_x + I_y$ n'est pas modulée (en effet $I_\pi \equiv I_z$ et $I_\sigma \equiv I_x = I_y$ par raison de symétrie).

L'opérateur $\sum_M |\alpha_{FM}\rangle\langle\alpha_{FM}| = \mathcal{P}$ est scalaire puisqu'il commute avec \vec{F} et

$$I_x + I_y + I_z = \sum_{\substack{F_1' F_2' \\ M'}} \langle\alpha'_{F_1' M'} | \sigma | \alpha'_{F_2' M'} \rangle \langle\alpha'_{F_2' M'} | \vec{P} \cdot (\mathcal{P} \vec{P}) | \alpha'_{F_1' M'} \rangle .$$

Le produit scalaire $\vec{P} \cdot (\mathcal{P} \vec{P})$ n'a d'éléments de matrice qu'entre deux états identiques ; le coefficient de la cohérence responsable de la modulation s'annule donc dans cette somme.

Autrement dit, la partie modulée de l'intensité détectée "en σ " est deux fois moindre que celle de l'intensité détectée "en π " et en opposition de phase.

Notons que ce résultat ne s'applique au cas de l'excitation par une bande spectrale large que dans la mesure où l'on peut admettre que les populations ne contiennent pas de terme modulé.

II. INFLUENCE DE LA STRUCTURE DU NIVEAU FONDAMENTAL.

Dans le paragraphe précédent, l'opérateur de détection décrit la détection de la lumière de fluorescence vers un sous-niveau hyperfin fondamental. Si l'on ne résout pas la structure du niveau fondamental, l'opérateur de détection mis en jeu s'écrit "en π ".

$$\begin{aligned}
D_{\pi} &= \sum_{FM} P_z |\alpha FM\rangle \langle \alpha FM| P_z \\
&= \sum_{M_I M_J} P_z |\beta I J M_I M_J\rangle \langle \beta I J M_I M_J| P_z \\
&= P_z \mathcal{J} P_z
\end{aligned}$$

\mathcal{J} étant un opérateur scalaire (commutant avec \vec{F} et \vec{J}) n'agissant pas sur les variables nucléaires.

On peut écrire encore :

$$D_{\pi} = (P \begin{smallmatrix} 1 \\ 0 \end{smallmatrix}) . (\mathcal{J} P) \begin{smallmatrix} 1 \\ 0 \end{smallmatrix} = \sum_x \langle 11 00 | x 0 \rangle T \begin{smallmatrix} x \\ 0 \end{smallmatrix}$$

où $T \begin{smallmatrix} x \\ 0 \end{smallmatrix}$ est l'opérateur couplé

$$T \begin{smallmatrix} x \\ 0 \end{smallmatrix} = \left\{ P^1 . (\mathcal{J} P)^1 \right\}_0^x .$$

Le coefficient $\langle 11 00 | 10 \rangle$ de la composante vectorielle $T \begin{smallmatrix} 1 \\ 0 \end{smallmatrix}$ s'annule.

La composante scalaire $T \begin{smallmatrix} 0 \\ 0 \end{smallmatrix}$ ne peut être responsable que de termes non modulés.

Quant à l'opérateur de rang 2, il ne peut donner des termes modulés que si $F'_1 \neq F'_2$. Cependant, il ne peut, d'une part, pas coupler les sous-niveaux $F'_1=0$ et $F'_2=1$, et ce cas se présente pour la raie D_2 ; d'autre part, le nombre quantique J' du niveau supérieur doit être strictement supérieur à 1/2 puisque $T \begin{smallmatrix} 2 \\ 0 \end{smallmatrix}$ n'agit que sur les variables orbitales. $J'=0$ ne donnant qu'un niveau hyperfin, ce cas n'inté-

resse pas nos expériences de modulation. Par contre, le cas $J'=1/2$ apparaît pour la raie D_1 .

Il est impossible d'observer sur la raie D_2 une modulation due à la cohérence entre les sous-niveaux $F'=0$ et $F'=1$ tant que l'on excite en polarisation linéaire. L'absence de modulation sur la raie D_1 n'est, elle, due qu'à la façon de détecter. Supposons, en effet, que l'on sépare les sous-niveaux de détection $F=1$ et $F=2$ du niveau fondamental. (Ceci est possible parce que l'intervalle de structure hyperfine du niveau fondamental est environ dix fois plus large que celui du niveau excité). On a alors affaire à deux opérateurs de détection

$$D_{\pi_1} = \sum_M P_z |\alpha 1M\rangle \langle \alpha 1M| P_z$$

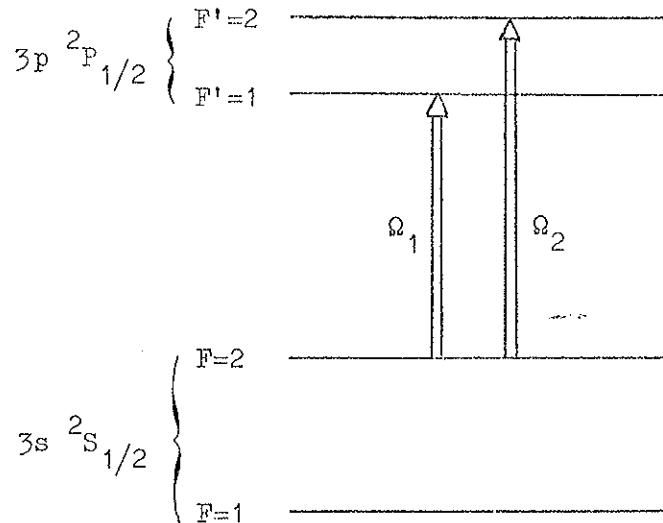
$$\text{et } D_{\pi_2} = \sum_M P_z |\alpha 2M\rangle \langle \alpha 2M| P_z$$

où chacun des deux projecteurs $|\alpha 1M\rangle \langle \alpha 1M|$ et $|\alpha 2M\rangle \langle \alpha 2M|$ n'est pas scalaire par rapport à \vec{J} .

En bande large, la démonstration reste la même à condition que l'on puisse faire l'approximation qui consiste à négliger les termes modulés qui apparaissent dans l'expression des populations.

III. MODULATION SUR LA RAIE D₁ DU SODIUM.

Supposons que l'on excite les atomes du jet de sodium de la façon suivante :



Le choix du sous-niveau fondamental à partir duquel on excite est dû aux probabilités de transition pour la polarisation envisagée. (La transition $F=1 \leftrightarrow F'=1$ est cinq fois moins probable que les trois autres qui sont toutes égales).

Les populations et cohérence du niveau supérieur sont données par les équations (B-1)

$$\langle \alpha' 1M | \sigma | \alpha' 1M \rangle = \frac{4 |\langle \alpha' 1M | P_0^1 \epsilon | \alpha 2M \rangle|^2}{5 (\gamma^2 + 4\delta_1^2)}$$

$$\langle \alpha' 2M | \sigma | \alpha' 2M \rangle = \frac{4 |\langle \alpha' 2M | P_0^1 \epsilon | \alpha 2M \rangle|^2}{5 (\gamma^2 + 4\delta_2^2)}$$

$$\langle \alpha' 2M | \sigma | \alpha' 1M \rangle = e^{-i \Omega_{21} t} \frac{\langle \alpha' 2M | P_0^1 \epsilon | \alpha 2M \rangle \langle \alpha 2M | P_0^1 \epsilon^* | \alpha' 1M \rangle}{5 (\gamma + 2i \delta_2)(\gamma - 2i \delta_1)}$$

Nous allons calculer les taux de modulation des deux signaux de fluorescence I_{π_1} et I_{π_2} , détectés "en π ", vers chacun des sous-niveaux $F=1$ et $F=2$ du niveau fondamental. Ces deux signaux doivent être, d'après les conclusions du paragraphe II, en opposition de phase.

1°) Taux de modulation de I_{π_1}

$$I_{\pi_1} = \text{Tr } \sigma D_{\pi_1} = \sum_M I_{\pi_1}(M)$$

$$\begin{aligned} \sum_M & \langle \alpha' 1M | \sigma | \alpha' 1M \rangle \left| \langle \alpha' 1M | P_0^1 | \alpha 1M \rangle \right|^2 \\ & + \langle \alpha' 2M | \sigma | \alpha' 2M \rangle \left| \langle \alpha' 2M | P_0^1 | \alpha 1M \rangle \right|^2 \\ & + \langle \alpha' 2M | \sigma | \alpha' 1M \rangle \langle \alpha' 1M | P_0^1 | \alpha 1M \rangle \langle \alpha 1M | P_0^1 | \alpha' 2M \rangle \\ & + \langle \alpha' 1M | \sigma | \alpha' 2M \rangle \langle \alpha' 2M | P_0^1 | \alpha 1M \rangle \langle \alpha 1M | P_0^1 | \alpha' 1M \rangle . \end{aligned}$$

Nous allons montrer que chaque contribution $I_{\pi_1}(M)$ de l'intensité s'identifie formellement, à un coefficient multiplicatif près, à l'intensité I émise par un atome à trois niveaux non dégénérés (A-4). Au cours de cette démonstration nous simplifions la notation des éléments de matrice de la façon suivante :

$$\langle \alpha' F' M | P_0^1 | \alpha F M \rangle = P_M^{F'F}$$

$$\langle \alpha' F'_1 M | \sigma | \alpha F'_2 M \rangle = \sigma_M^{F'_1 F'_2}$$

En outre nous isolons dans les expressions de $\sigma_M^{F'_1 F'_2}$ la partie qui ne dépend pas de M et nous la notons $\sigma_{F'_1 F'_2}$.

Avec ces notations, nous avons :

$$\sigma_M^{11} = \sigma_{11} |P_M^{12}|^2$$

$$\sigma_M^{22} = \sigma_{22} |P_M^{22}|^2$$

$$\sigma_M^{21} = \sigma_{21} P_M^{22} (P_M^{12})^*$$

$$\begin{aligned} I_{\pi_1}(M) &= \sigma_{11} |P_M^{12}|^2 |P_M^{11}|^2 + \sigma_{22} |P_M^{22}|^2 |P_M^{21}|^2 \\ &\quad + \sigma_{21} P_M^{22} (P_M^{12})^* P_M^{11} (P_M^{21})^* \\ &\quad + \sigma_{12} (P_M^{22})^* P_M^{12} (P_M^{11})^* P_M^{21} \end{aligned}$$

Des relations simples existent entre les éléments de matrice de P_0^1 .

En effet, nous avons démontré au paragraphe précédent que :

$$\sum_{F'M} \langle \alpha' 1M' | P_0^1 | \alpha F M \rangle \langle \alpha F M | P_0^1 | \alpha' 2M' \rangle = 0$$

à cause de la valeur particulière $J' = \frac{1}{2}$. Cette identité s'écrit encore :

$$P_M^{11} (P_M^{21})^* = -P_M^{12} (P_M^{22})^* .$$

On démontre de la même façon que

$$\sum_{F'M'} \langle \alpha 1M | P_0^1 | \alpha' F'M' \rangle \langle \alpha' F'M' | P_0^1 | \alpha 2M \rangle = 0$$

à cause de la valeur particulière $J = \frac{1}{2}$.

Autrement dit :

$$P_M^{11} (P_M^{12})^* = -P_M^{21} (P_M^{22})^*$$

ce qui confère à l'intensité la forme :

$$I_{\pi_1}(M) = \mathcal{J}(M) [\sigma_{11} + \sigma_{22} - \sigma_{21} - \sigma_{12}]$$

$$\text{avec } \mathcal{J}(M) = |P_M^{12}|^2 |P_M^{11}|^2 = |P_M^{21}|^2 |P_M^{22}|^2 .$$

On en déduit le taux de modulation τ_{π_1} sans avoir à calculer les éléments de matrice du moment dipolaire électrique :

$$\tau_{\pi_1} = \frac{2|\sigma_{21}|}{\sigma_{11} + \sigma_{22}} = \frac{(\gamma^2 + 4\delta_1^2)^{\frac{1}{2}} (\gamma^2 + 4\delta_2^2)^{\frac{1}{2}}}{\gamma^2 + 2\delta_1^2 + 2\delta_2^2}$$

τ_{π_1} s'identifie à τ de la formule (A-5) lorsque $\gamma_1 = \gamma_2$.

Le déphasage entre le signal de fluorescence et le signal d'excitation est, de même, donné par les formules (A-5). Le signal effectivement détecté est donc (A-7) :

$$T_{\pi_1} = \frac{2}{\pi} \frac{\gamma^2 + 4\delta_1\delta_2}{\gamma^2 + 2\delta_1^2 + 2\delta_2^2}$$

(Les études de τ_{π_1} et T_{π_1} sont faites dans le paragraphe A).

2°) Taux de modulation de I_{π_2} .

$$I_{\pi_2} = \text{Tr } \sigma D_{\pi_2} =$$

$$\begin{aligned} & \sum_M \langle \alpha' 1M | \sigma | \alpha' 1M \rangle \left| \langle \alpha' 1M | P_0^1 | \alpha 2M \rangle \right|^2 \\ & + \langle \alpha' 2M | \sigma | \alpha' 2M \rangle \left| \langle \alpha' 2M | P_0^2 | \alpha 2M \rangle \right|^2 \\ & + \langle \alpha' 2M | \sigma | \alpha' 1M \rangle \langle \alpha' 1M | P_0^1 | \alpha 2M \rangle \langle \alpha 2M | P_0^1 | \alpha' 2M \rangle \\ & + \langle \alpha' 1M | \sigma | \alpha' 2M \rangle \langle \alpha' 2M | P_0^1 | \alpha 2M \rangle \langle \alpha 2M | P_0^1 | \alpha' 1M \rangle . \end{aligned}$$

I_{π_2} s'écrit encore avec les notations ci-dessus :

$$I_{\pi_2} = \sum_M \sigma_{11} |P_M^{12}|^4 + \sigma_{22} |P_M^{22}|^4 + (\sigma_{12} + \sigma_{21}) |P_M^{22}|^2 |P_M^{12}|^2 .$$

Il se trouve, à cause des valeurs particulières des moments angulaires ($J = J' = \frac{1}{2}$ et $I = \frac{3}{2}$), que $\sum_M |P_M^{12}|^4 = \sum_M |P_M^{22}|^4$.

L'opérateur P^1 n'agissant pas sur les variables nucléaires, ses éléments de matrice s'expriment en fonction du même élément de matrice réduit $\langle \gamma' J' || P^1 || \gamma J \rangle$ [8] :

$$\langle \alpha' F' M | P_0^1 | \alpha F M \rangle = (-)^{I+J+1-M+2F'} \left\{ [F][F'] \right\}^{\frac{1}{2}}$$

$$\begin{pmatrix} F' & 1 & F \\ -M & 0 & M \end{pmatrix} \begin{pmatrix} F' & 1 & F \\ J & I & J' \end{pmatrix} \langle \gamma' J' || P^1 || \gamma J \rangle .$$

Les coefficients de proportionnalité sont aisément calculables grâce aux tables [9] et [10] .

$$\langle \alpha' 2M | P_0^1 | \alpha 2M \rangle = -\frac{1}{2} \frac{M}{\sqrt{2 \times 3}} \langle \gamma' \frac{1}{2} \| P^1 \| \gamma \frac{1}{2} \rangle$$

$$\langle \alpha' 1M | P_0^1 | \alpha 2M \rangle = +\frac{1}{2} \sqrt{\frac{4-M^2}{2 \times 3}} \langle \gamma' \frac{1}{2} \| P^1 \| \gamma \frac{1}{2} \rangle .$$

Ces formules permettent de démontrer aisément la relation annoncée plus haut :

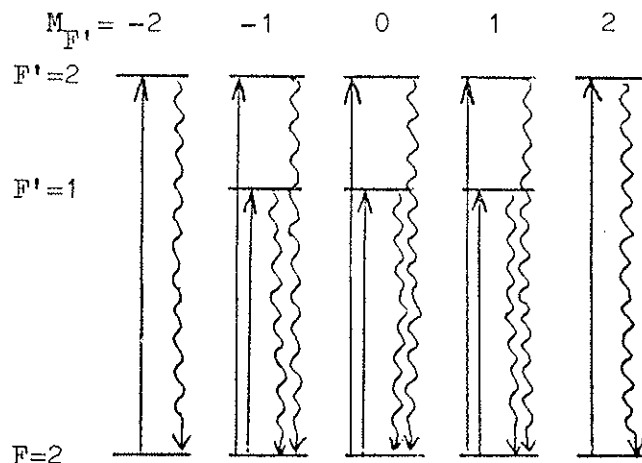
$$\sum_M |P_M^{12}|^4 = \sum_M |P_M^{22}|^4 .$$

Le taux de modulation τ_{π_2} s'identifie donc à τ_{π_1} au facteur multiplicatif près :

$$\frac{\sum_M |P_M^{22}|^2 |P_M^{12}|^2}{\sum_M |P_M^{22}|^4} = \frac{\sum_{M=-1}^{+1} M^2 (4-M^2)}{\sum_{M=-2}^{+2} M^4} = \frac{3}{17}$$

$$\tau_{\pi_2} = \frac{3}{17} \frac{(\gamma^2 + 4\delta_1^2)^{\frac{1}{2}} (\gamma^2 + 4\delta_2^2)^{\frac{1}{2}}}{\gamma^2 + 2\delta_1^2 + 2\delta_2^2}$$

Nous ne devons pas nous étonner du fait que la valeur maximale du taux de modulation soit inférieur à 1 puisque les sous-niveaux $M = \pm 2$ ne participent qu'à la partie non modulée de l'intensité :



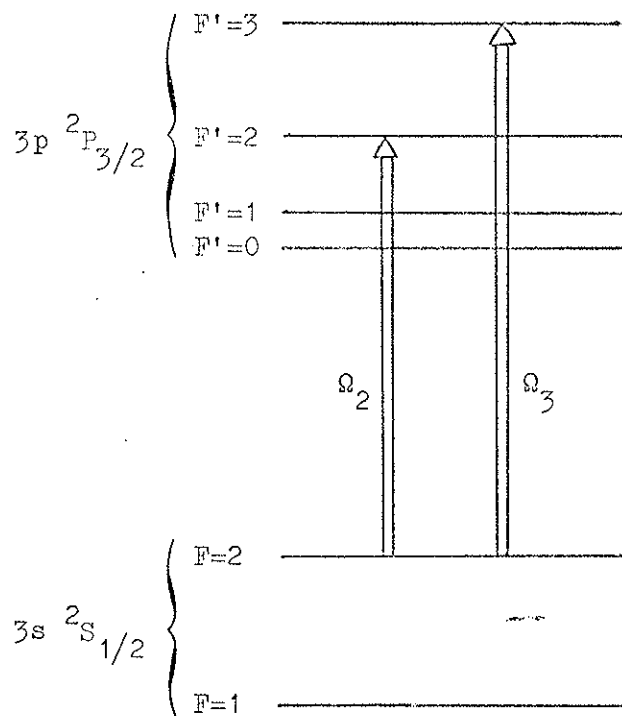
Le signal effectivement détecté s'identifie à T_{π_1} au même facteur multiplicatif près :

$$T_{\pi_2} = \frac{2 \times 3}{17\pi} \frac{\gamma^2 + 4 \delta_1 \delta_2}{\gamma^2 + 2\delta_1^2 + 2\delta_2^2}$$

En résumé, les signaux de modulation de la raie D_1 sont en opposition de phase suivant que l'on observe la fluorescence vers le sous-niveau $F=1$ ou $F=2$, le taux de modulation, pour une excitation linéaire à partir de $F=2$, du signal détecté sur $F=2$, étant près de six fois moins important que celui détecté sur $F=1$.

IV. MODULATION SUR LA RAIE D_2 DU SODIUM.

La structure de la raie D_2 est sensiblement plus complexe. Le niveau $3p \ ^2P_{3/2}$ comprend quatre sous-niveaux hyperfins difficiles à séparer. Pour garder la condition simplificatrice d'un intervalle de structure hyperfine grand devant la largeur naturelle, la cohérence est induite entre les deux sous-niveaux $F'=2$ et $F'=3$. L'excitation est donc nécessairement faite à partir de $F=2$ selon le diagramme suivant :



J' étant ici égal à $3/2$, rien ne s'oppose à ce que la détection se fasse sur l'ensemble des deux sous-niveaux hyperfins. Soit, pour une détection "en π " :

$$D_{\pi} = \sum_{FM} P_0^1 |\alpha' FM\rangle \langle \alpha' FM| P_0^1$$

$$\begin{aligned} I_{\pi} = & \langle \alpha' 2M | \sigma | \alpha' 2M \rangle [|\langle \alpha' 2M | P_0^1 | \alpha 2M \rangle|^2 + |\langle \alpha' 2M | P_0^1 | \alpha 1M \rangle|^2] \\ & + \langle \alpha' 3M | \sigma | \alpha' 3M \rangle |\langle \alpha' 3M | P_0^1 | \alpha 2M \rangle|^2 \\ & + \langle \alpha' 2M | \sigma | \alpha' 3M \rangle \langle \alpha' 3M | P_0^1 | \alpha 2M \rangle \langle \alpha 2M | P_0^1 | \alpha' 2M \rangle \\ & + \langle \alpha' 3M | \sigma | \alpha' 2M \rangle \langle \alpha' 2M | P_0^1 | \alpha 2M \rangle \langle \alpha 2M | P_0^1 | \alpha' 3M \rangle \end{aligned}$$

Les éléments de la matrice densité sont donnés par les équations (B-1) en notant Ω_2 et Ω_3 les fréquences des champs quasi-résonnants pour les transitions $F=2 \leftrightarrow F'=2$ et $F=2 \leftrightarrow F'=3$, δ_2 et δ_3 leurs désaccords :

$$\begin{aligned} \langle \alpha' 3M | \sigma | \alpha' 3M \rangle &= \frac{4 |\langle \alpha' 3M | P_0^1 | \alpha 2M \rangle|^2 |\epsilon|^2}{5 (\gamma^2 + 4 \delta_3^2)} \\ \langle \alpha' 2M | \sigma | \alpha' 2M \rangle &= \frac{4 |\langle \alpha' 2M | P_0^1 | \alpha 2M \rangle|^2 |\epsilon|^2}{5 (\gamma^2 + 4 \delta_2^2)} \\ \langle \alpha' 2M | \sigma | \alpha' 3M \rangle &= \frac{4 \langle \alpha' 2M | P_0^1 | \alpha 2M \rangle \langle \alpha 2M | P_0^1 | \alpha' 3M \rangle e^{-i \Omega_{23} t} |\epsilon|^2}{5 (\gamma + 2i \delta_2) (\gamma - 2i \delta_3)} \end{aligned}$$

Les éléments de matrice qui interviennent dans I_π sont les suivants :

$$\begin{aligned} \langle \alpha' 2M | P_0^1 | \alpha 2M \rangle &= \frac{M}{4 \sqrt{3}} \langle \gamma' \frac{3}{2} || P^1 || \gamma \frac{1}{2} \rangle \\ \langle \alpha' 3M | P_0^1 | \alpha 2M \rangle &= -\frac{\sqrt{9-M^2}}{2 \sqrt{3 \times 5}} \langle \gamma' \frac{3}{2} || P^1 || \gamma \frac{1}{2} \rangle \\ \langle \alpha' 2M | P_0^1 | \alpha 1M \rangle &= \frac{\sqrt{4-M^2}}{4 \sqrt{3}} \langle \gamma' \frac{3}{2} || P^1 || \gamma \frac{1}{2} \rangle \end{aligned}$$

On en déduit le taux de modulation

$$\tau_\pi = \frac{280 (\gamma^2 + 4 \delta_2^2)^{\frac{1}{2}} (\gamma^2 + 4 \delta_3^2)^{\frac{1}{2}}}{643 \gamma^2 + 4 (125 \delta_3^2 + 518 \delta_2^2)}$$

Le déphasage étant donné par $\cos \varphi = \frac{\gamma^2 + 4 \delta_2 \delta_3}{(\gamma^2 + 4 \delta_2^2)^{\frac{1}{2}} (\gamma^2 + 4 \delta_3^2)^{\frac{1}{2}}}$

on en déduit le signal détecté

$$T_{\pi} = \frac{2}{\pi} \tau_{\pi} \cos \varphi = \frac{2 \times 280}{\pi} \frac{\gamma^2 + 4 \delta_2 \delta_3}{643 \gamma^2 + 4 (125 \delta_3^2 + 518 \delta_2^2)}$$

Dans le cas présent, la valeur maximale du taux de modulation n'est pas égale à un pour le même type de raison invoquée au paragraphe précédent pour τ_{π_2} .

Dans ce chapitre, nous avons d'abord fait l'étude d'un modèle simplifié à trois niveaux non dégénérés. Le taux de modulation de la lumière de fluorescence émise par ce système présente deux résonances, qui sont caractéristiques de l'excitation monochromatique en lumière modulée, avec un maximum égal à un. Nous avons montré que la condition de résonance s'interprète comme l'égalité de deux intensités de fluorescence émise par deux systèmes découplés et s'écrit donc simplement en fonction des populations des niveaux excités.

Le cas réel, étudié sur l'atome de sodium, se différencie du modèle par la dégénérescence Zeeman des sous-niveaux hyperfins concernés et la structure du niveau fondamental.

Si l'on ne détecte que sur un des sous-niveaux du fondamental, on retrouve l'essentiel des propriétés mises en évidence sur le modèle pour

chaque sous-système caractérisé par sa valeur de M . Lorsqu'on considère le système entier, les contributions de chaque M s'ajoutent dans le calcul de l'intensité totale ; la condition de résonance peut s'écrire encore comme l'égalité de deux intensités émises par deux systèmes indépendants. Mais ce ne sont pas les populations totales qui interviennent et le maximum du taux de modulation n'est égal à l'unité que dans des cas très particuliers.

Si l'on ne sépare pas les deux sous-niveaux de détection, les intensités de fluorescence vers chacun des deux sous-niveaux s'ajoutent ; si leurs parties modulées présentent un déphasage, elles peuvent se détruire mutuellement, partiellement ou totalement. Il est impossible, en particulier, d'observer dans ces conditions une modulation sur la raie D_1 . Induire par une excitation convenable une cohérence entre sous-niveaux ne suffit pas pour affirmer que la lumière, émise par désexcitation spontanée de l'atome, présente une modulation. Il faut encore s'assurer que les conditions de la détection permettent d'observer cette modulation. Cette restriction est valable également pour une expérience de modulation en bande large ou de battements quantiques.

Expérimentalement, il est possible de mettre en évidence ces résultats, mais la quantité que l'on détecte n'étant pas exactement le taux de modulation, la seule résonance qui apparaît effectivement est celle pour laquelle la phase s'annule. Les effets spécifiques qu'apportent la dégénérescence et la structure du niveau fondamental peuvent être qualitativement observés sur la phase de la modulation de la lumière de fluorescence polarisée.

CHAPITRE III

ETUDE EXPERIMENTALE DES RESONANCES DE MODULATION
EN EXCITATION MONOCHROMATIQUE

L'objectif expérimental est de mettre en évidence la fluorescence modulée des raies D_1 et D_2 du sodium telle qu'elle est décrite dans le chapitre précédent. Nous disposons, pour réaliser une excitation monochromatique, d'un laser monomode accordable et d'un jet atomique.

Ce chapitre décrit, dans un premier paragraphe, la façon d'obtenir deux raies monochromatiques cohérentes par une modulation électro-optique du faisceau laser et les résultats obtenus par cette méthode. Le second paragraphe décrit une possibilité d'excitation mieux adaptée au cas monochromatique.

A. ETUDE EXPERIMENTALE SUR LES RAIES D_1 ET D_2 DU SODIUM.

I. DISPOSITIF EXPERIMENTAL.

Ce dispositif est schématisé sur la figure 7 . Les éléments qui le constituent sont les suivants :

1°) Le jet :

La vapeur de sodium sort d'un four chauffé entre 200 et 300°C par une ouverture de 1 mm de diamètre, les atomes se propageant en ligne droite (perpendiculairement au plan de figure) dans une enceinte où règne un vide de l'ordre de 10^{-6} Torr (le nombre d'atomes par unité de volume est de l'ordre de 10^{-13} à 10^{-14} atomes par cm^3). La collimation, réalisée par une fente de largeur 1mm perpendiculaire au jet et au faisceau laser d'excitation, est de l'ordre de 200.

2°) Le dispositif d'excitation :

Les atomes de sodium du jet sont excités par un laser à colorant monomode modulé en amplitude par effet électro-optique.

Le laser à colorant utilisé a été construit au laboratoire [11]. Il est asservi sur le "sigmamètre" [12].

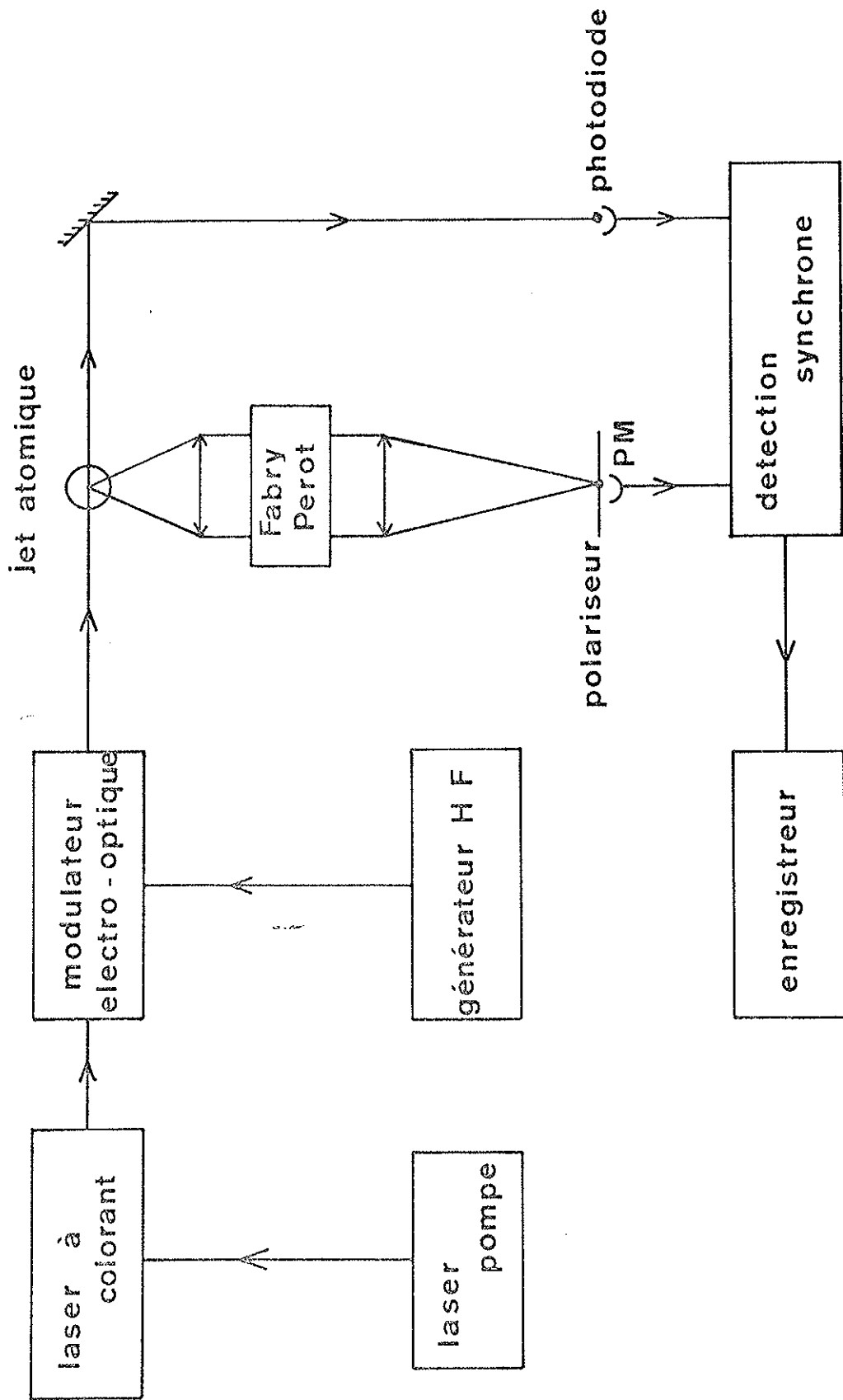


Figure 7 - Schéma du montage expérimental.

L'intensité du laser est modulée en amplitude par un cristal de DKDP (phosphate diacide de potassium deutéré KD_2PO_4) auquel on applique une tension sinusoïdale de haute fréquence (autour de 60 MHz ou 190 MHz selon la raie étudiée). Le générateur dont nous disposons délivre au maximum une dizaine de Watts avec une impédance de sortie de 50Ω . Pour obtenir une tension de l'ordre du millier de Volts il faut ajouter un circuit de surtension, du type self-capacité, en bout de ligne.

La modulation est réalisée par effet Pockels :

Soient E_x , E_y et E_z les composantes du champ appliqué ; dans le système des axes principaux cristallographiques, l'ellipsoïde des indices s'écrit :

$$\frac{x^2 + y^2}{n_o^2} + \frac{z^2}{n_e^2} + 2r_{41} E_x yz + 2r_{41} E_y zx + 2r_{63} E_z xy = 1$$

où n_o et n_e sont les indices ordinaire et extraordinaire du cristal, r_{ij} sont les coefficients du tenseur électro-optique.

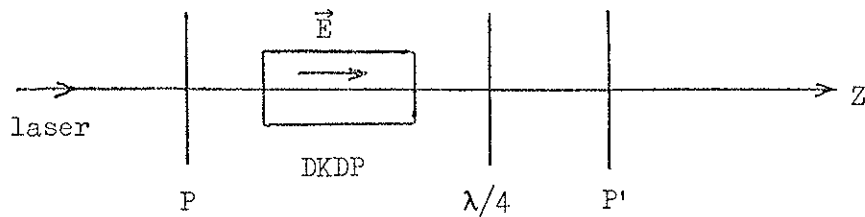
Pour une direction de propagation du laser parallèle à Oz , et en l'absence de champ appliqué, le cristal se comporte de façon isotrope.

Pour la même direction de propagation et un champ appliqué $E_z \neq 0$ les axes principaux deviennent x' et y' déduits de x et y par une rotation de $\frac{\pi}{4}$ avec les indices correspondants :

$$n_{x'} = n_o \left(1 - \frac{n_o^2}{2} r_{63} E_z \right)$$

$$n_{y'} = n_o \left(1 + \frac{n_o^2}{2} r_{63} E_z \right)$$

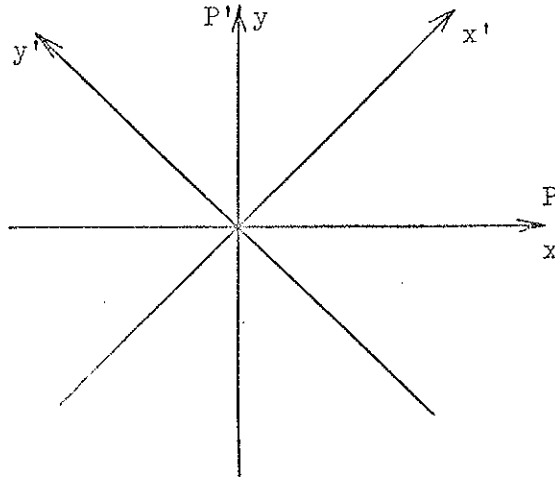
Donc, si l'on applique au cristal un champ électrique E_z sinusoïdal, la variation sinusoïdale de $n_{x'}$ et $n_{y'}$ crée, en général, une modulation de phase de l'onde qui se propage dans le cristal. On peut toutefois réaliser une modulation d'amplitude, du moins en première approximation, en disposant les éléments de la façon suivante :



P et P' sont deux polariseurs,
 $\lambda/4$ une lame quart d'onde pour le laser.

[La lumière du laser étant polarisée, le polariseur P est en fait inutile ; il peut être éventuellement remplacé par une lame demi-onde pour faire tourner la direction de polarisation du laser dans la direction convenable].

Les directions relatives des axes du cristal et des polariseurs sont les suivantes :



Le déphasage entre les composantes x' et y' qu'apporte un cristal de longueur ℓ à l'onde polarisée de longueur d'onde λ est :

$$\varphi = \frac{2\pi \ell}{\lambda} (n_{y'} - n_{x'}) = \frac{2\pi}{\lambda} n_o^3 r_{63} V$$

avec $V = E_z \ell$.

Un déphasage supplémentaire $\varphi_0 = \frac{\pi}{2}$ est apporté par la lame quart d'onde lorsque ses axes coïncident avec les axes $x' y'$.

L'onde, à la sortie du polariseur P' , a l'amplitude

$$A = A_0 \cos(\Omega_1 t) \sin \frac{\varphi + \varphi_0}{2}$$

où Ω_1 est la fréquence optique de l'onde

et φ une fonction sinusoïdale du temps $\varphi = m \cos(\Omega_{21} t)$ (Ω_{21} fréquence de la tension V appliquée au cristal)

$$\begin{aligned} \sin \left(\frac{\varphi}{2} + \frac{\pi}{4} \right) &= \frac{1}{\sqrt{2}} \left(\cos \frac{\varphi}{2} + \sin \frac{\varphi}{2} \right) \\ &\approx \frac{1}{\sqrt{2}} \left(J_0 \left(\frac{m}{2} \right) + 2 J_1 \left(\frac{m}{2} \right) \cos(\Omega_{21} t) \right) \end{aligned}$$

J_0 et J_1 sont les fonctions de Bessel.

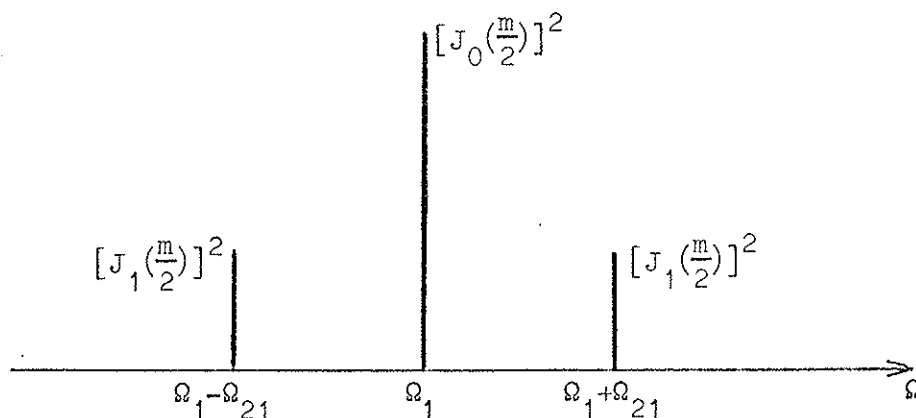
Nous avons négligé dans cette formule les termes de fréquence supérieure à Ω_{21} . Le premier terme négligé apparaît à la fréquence $2\Omega_{21}$ avec le coefficient $2J_2(\frac{m}{2})$. Pour $m=1$, ce qui correspond à des valeurs couramment employées de la tension V ($\sim 10^3$ V)

$$J_0(\frac{m}{2}) = 0,95 \quad 2J_1(\frac{m}{2}) = 0,58 \quad \text{et} \quad 2J_2(\frac{m}{2}) = 0,06 .$$

En première approximation nous écrirons l'amplitude de l'onde :

$$A = A_0 \left\{ J_0(\frac{m}{2}) \cos(\Omega_1 t) + J_1(\frac{m}{2}) \cos[(\Omega_1 + \Omega_{21})t] + J_1(\frac{m}{2}) \cos[(\Omega_1 - \Omega_{21})t] \right\} .$$

Le spectre de puissance correspondant se présente de la façon suivante :



Les bandes latérales négligées ($\Omega_1 \pm 2\Omega_{21}$) sont de l'ordre de cent fois moins importantes que les bandes latérales d'ordre 1.

Il est important de réaliser cette modulation d'amplitude avec porteuse. En effet, l'exploration d'une structure hyperfine nécessite que l'on fixe l'une des composantes du champ (Ω_1) sur une transition. La deuxième composante du champ ($\Omega_1 + \Omega_{21}$ par exemple) varie jusqu'à

entrer en résonance avec une seconde transition. Le choix des niveaux explorés est fait de telle façon que la bande latérale symétrique $(\Omega_1 - \Omega_{21})$ n'entre en résonance avec aucune autre transition. Signalons que nous ne réalisons pas, avec ce montage, la condition simplificatrice d'égalité des modules des deux champs excitateurs. Cette condition est en effet incompatible avec l'approximation qui consiste à négliger la modulation à la fréquence $2\Omega_{21}$. Cette modulation à la fréquence double nécessiterait un filtrage pour la détection synchrone. Un tel montage ne peut être envisagé si l'on fait varier Ω_{21} .

3°) Le dispositif de détection.

La fluorescence est observée dans une direction perpendiculaire à la fois à la direction de propagation du faisceau laser et à celle du jet atomique.

La lumière est recueillie sur un photomultiplicateur rapide (RTC XP 2020) dont le "temps de montée" est 1,3 ns. On interpose un polariseur que l'on oriente, soit dans la direction de polarisation de la lumière excitatrice, c'est-à-dire parallèle au jet atomique (détection "en π "), soit dans la direction perpendiculaire (détection "en σ "). On ajoute, pour l'étude de la structure de la raie D_1 (cf. chapitre théorique, § B.II) un interféromètre de Fabry-Pérot d'épaisseur optique variable par variation de pression, capable de résoudre la structure hyperfine du niveau fondamental du sodium.

Le signal fourni par le photomultiplicateur est envoyé, soit sur un oscilloscope de grande bande passante, soit, comme l'indique la figure, sur une détection synchrone suivie d'un enregistreur.

Nous avons choisi d'utiliser une détection synchrone plutôt qu'une détection hétérodyne pour plusieurs raisons. Elle permet de travailler avec des temps d'intégration plus longs, donc de détecter des flux d'énergie plus faibles ; elle paraît donc mieux adaptée pour détecter la fluorescence d'un jet analysée éventuellement par un Fabry-Pérot. Par ailleurs, elle est apériodique et autorise donc des balayages de la fréquence de modulation.

Au cours de ces balayages, le déphasage entre le signal délivré par le générateur de haute fréquence et le signal de modulation de la lumière laser est susceptible de varier. La référence de la détection synchrone est donc fournie par une photodiode rapide sur laquelle tombe une partie du faisceau laser modulé et non pas directement par le générateur.

Etant données les fréquences élevées auxquelles nous travaillons, cette détection synchrone est une détection à portes dont le schéma de fonctionnement est donné par la figure 8.

Le discriminateur, qui transforme le signal sinusoïdal en signal rectangulaire, commande l'ouverture en opposition de phase des portes dites "porte +" et "porte -". Chacune de ces portes laisse, pendant

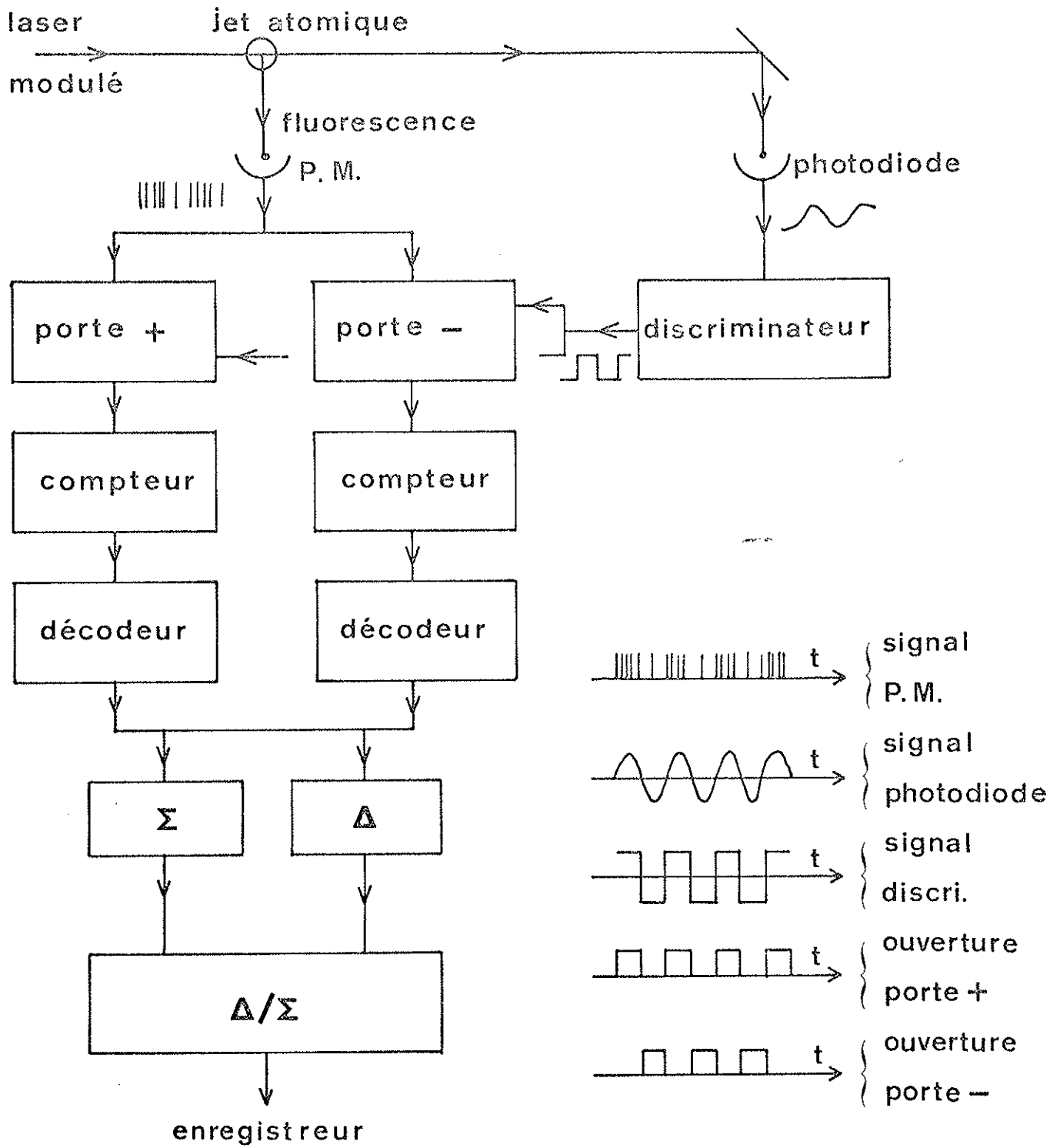


Figure 8 - Schéma de la détection à portes.

sa durée d'ouverture, passer les impulsions délivrées par le photomultiplicateur. Dans chacune des voies "+" et "-" les impulsions sont comptées et décodées de façon à faire la somme (Σ sur le schéma) et la différence (Δ) des impulsions dans chaque voie. Un diviseur est enfin chargé de faire le rapport (Δ/Σ) pour détecter un taux de modulation. On s'affranchit ainsi au premier ordre des fluctuations éventuelles du laser.

En haute fréquence, il faut tenir compte du temps de transit des électrons dans les cables coaxiaux ainsi que du retard propre du photomultiplicateur. On ajuste la phase en retardant, par l'adjonction de cables de longueur connue, le signal à la sortie de la photodiode.

II. RESULTATS EXPERIMENTAUX.

A l'aide du dispositif expérimental décrit ci-dessus, il s'agissait, dans un premier temps, pour nous, d'observer de façon qualitative la modulation de la lumière de fluorescence, donc de se mettre dans les conditions expérimentales les plus favorables. Une des difficultés à laquelle on se heurte lorsqu'on veut détecter une lumière de fluorescence, en particulier émise par un jet, est la faible intensité de cette lumière. Nous avons donc réalisé les premières expériences sans Fabry-Perot.

Nous avons vérifié le bon fonctionnement du système de détection, en particulier vers 190 MHz, en envoyant sur le photomultiplicateur une fraction de la lumière laser modulée d'intensité comparable à celle de la fluorescence.

Après avoir constaté que, dans ces conditions, on n'observait pas de modulation sur la fluorescence de la raie D_1 du sodium, nous nous sommes intéressés à la raie D_2 . Le choix des sous-niveaux de $3p^2 P_{3/2}$ est imposé par les conditions expérimentales mêmes ; pour pouvoir négliger l'influence d'une des bandes latérales, la porteuse doit être quasi-résonnante pour l'une des deux transitions $F=1 \leftrightarrow F'=0$ ou $F=2 \leftrightarrow F'=3$. Si l'on se limite à une excitation en polarisation linéaire, nous avons vu (Chapitre II.B.II) que les règles de sélection interdisent l'établissement d'une cohérence entre les sous-niveaux $F'=0$ et $F'=1$. Il conviendrait donc d'exciter les sous-niveaux $F'=0$ et $F'=2$; mais l'écart entre $F'=0$ et $F'=1$ étant de l'ordre de grandeur de la largeur naturelle (10 MHz) nous avons choisi, pour nous placer dans les conditions les plus proches de la description théorique, de fixer la porteuse sur la transition $F=2 \leftrightarrow F'=3$ et la bande latérale utile sur $F=2 \leftrightarrow F'=2$. On se ménage ainsi la possibilité de s'écarter de la résonance (voir le schéma des niveaux du Chapitre II.B pour les ordres de grandeur).

Pour fixer la porteuse sur une transition donnée, on balaye la fréquence du laser non modulé et on la fixe sur la raie choisie. La figure 9 montre un enregistrement effectué dans ces conditions et les transitions correspondant aux différentes raies.

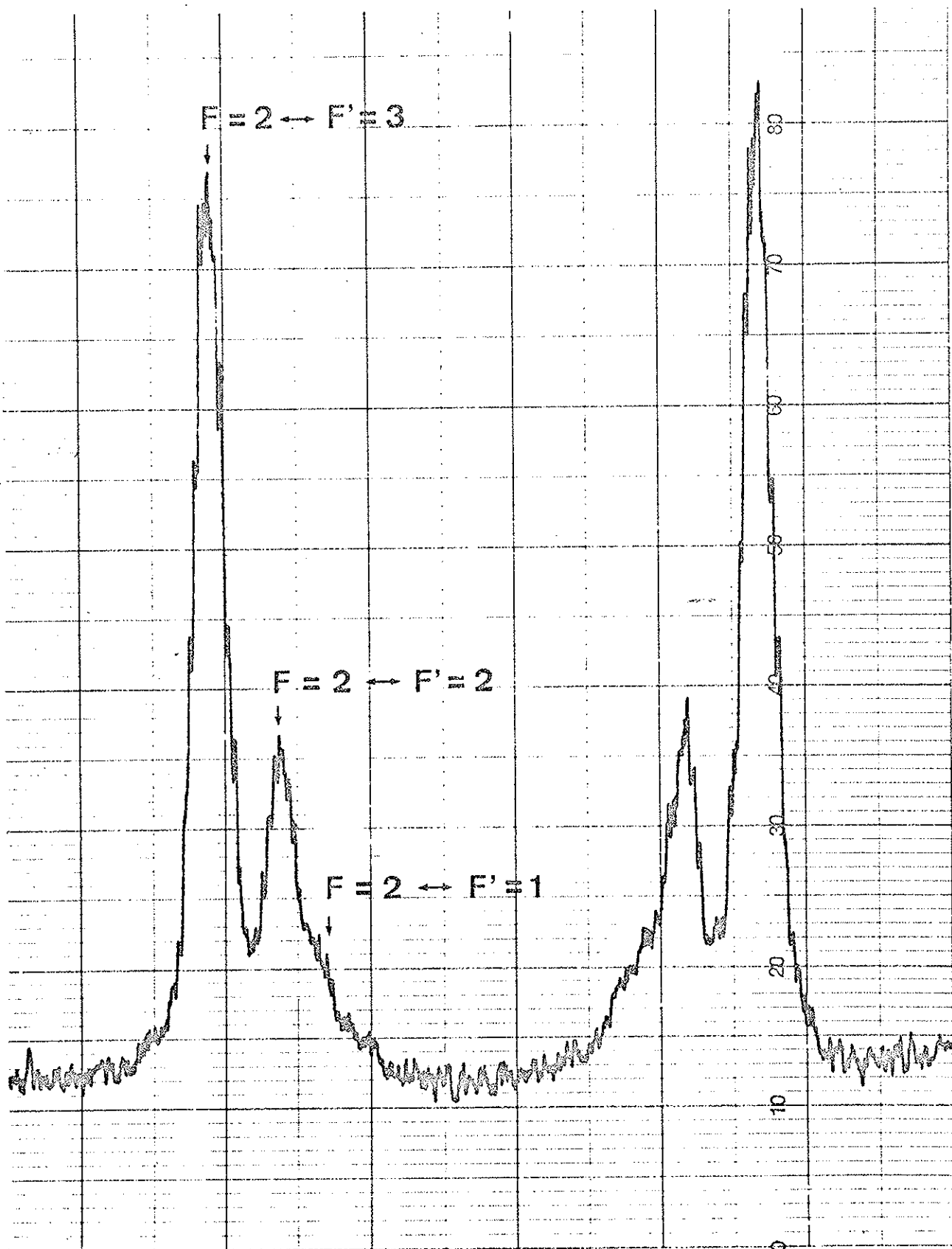


Figure 9 - Enregistrement de la structure de la raie D_2 émise par les atomes d'un jet excités par un laser monomode accordable (balayage aller et retour).

Le choix des sous-niveaux étant fait, nous avons encore la possibilité d'analyser le signal délivré par le photomultiplicateur qui détecte la lumière de fluorescence, soit par un oscilloscope, soit par la détection synchrone suivie d'un enregistreur. Dans les deux cas la bande passante de l'ensemble de détection est suffisamment grande pour distinguer chaque photo-électron et on est capable de compter le nombre de photons que reçoit le photomultiplicateur par unité de temps : de l'ordre de 10^7 par seconde, soit moins d'un par période de modulation.

1°) Détection à l'oscilloscope.

Les photographies des figures 10, 11 et 12 montrent les impulsions délivrées par le photomultiplicateur envoyées sur l'oscilloscope qu'on synchronise par le générateur de haute fréquence.

La photographie de la figure 10 montre un signal non modulé. Il s'agit de la fluorescence de la raie D_1 observée en "en π ". Connaissant la structure du niveau $^2P_{1/2}$ (l'intervalle entre $F'=1$ et $F'=2$ est de 190 MHz), nous avons réalisé la modulation du laser dans des conditions légèrement différentes de celles décrites plus haut : la haute fréquence est réglée aux alentours de 95 MHz et on supprime la lame quart d'onde pour moduler la lumière laser à la fréquence double (190 MHz) par utilisation des deux bandes latérales de même intensité. Nous nous trouvons dans les conditions d'excitation les meilleures. Nous avons constaté, conformément aux résultats du chapitre précédent, que, quelle que soit la fréquence du laser

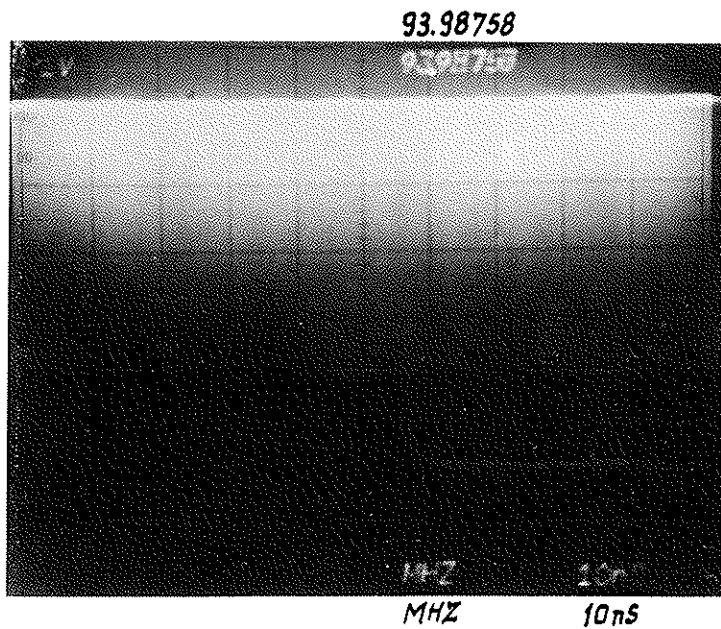


Figure 10 - Signal de fluorescence de la raie D_1 en l'absence de Fabry-Pérot.

(Les indications de fréquence portées sur cette photographie et celle de la Figure 12 sont relatives au signal délivré par le générateur de haute fréquence).

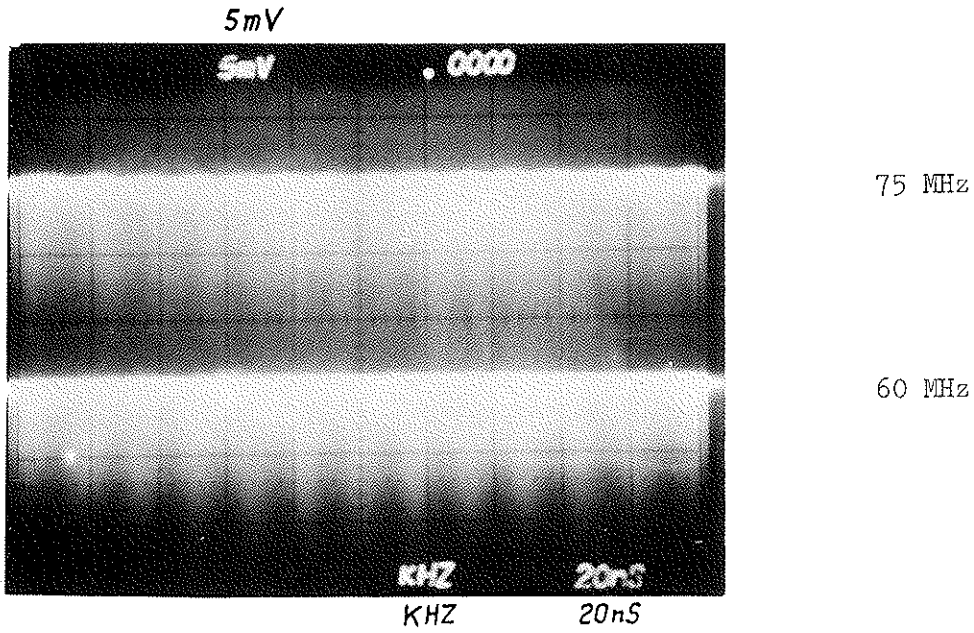


Figure 11 - Comparaison entre le signal détecté "en π " hors résonance (75 MHz) et à résonance (60 MHz).

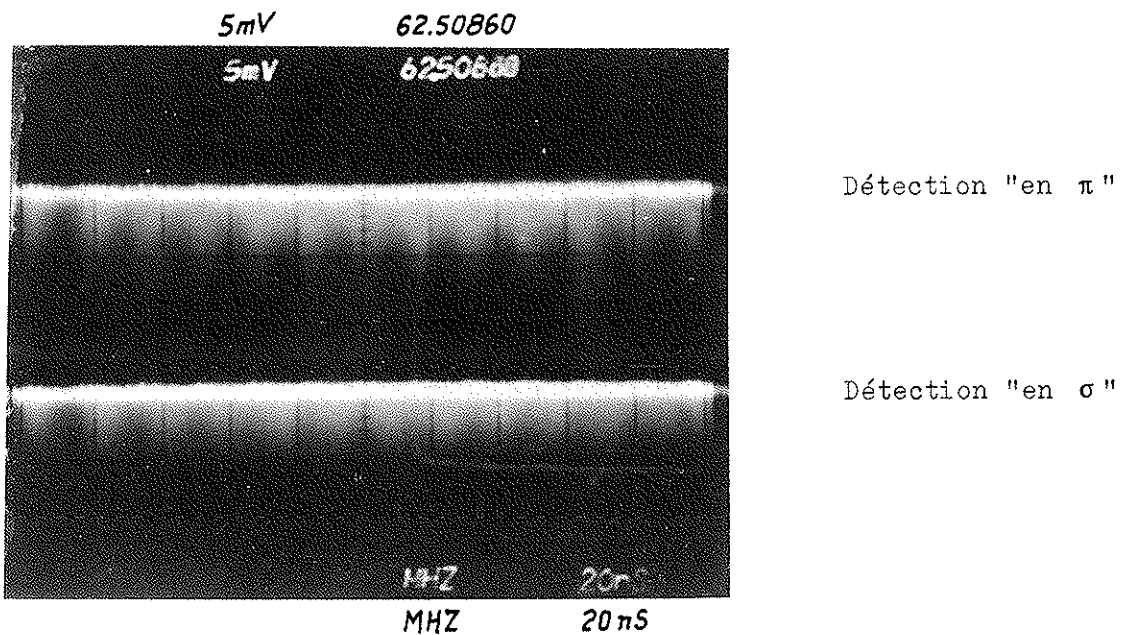


Figure 12 - Modulation de la fluorescence de la raie D_2 détectée "en π " et "en σ ", à résonance.

(balayable par le "sigmamètre"), aucune modulation n'apparaissait sur le signal de fluorescence dans ces conditions.

Les photographies des figures 11 et 12 montrent la modulation de la fluorescence de la raie D_2 .

La première montre l'effet du désaccord de la bande latérale utilisée par rapport à la transition. On constate qualitativement que le taux de modulation décroît lorsque l'on s'éloigne de la résonance.

La seconde met en évidence le déphasage de π qui existe entre I_π et I_σ près de la résonance.

2°) Détection synchrone à portes.

Pour observer la modulation de la lumière de fluorescence de la raie D_1 , il est nécessaire d'en faire l'analyse par un Fabry-Pérot d'intervalle spectral supérieur à l'intervalle de structure hyperfine du niveau fondamental. Il est très difficile de rendre compatibles les conditions de résolution de cette structure et celles de détection de la lumière de fluorescence du jet. Pour cette raison, nous n'avons pas, jusqu'à présent, observé cette modulation.

Par contre, nous avons pu effectuer des enregistrements aux alentours de 60 MHz pour étudier l'écart entre les sous-niveaux $F'=3$ et $F'=2$ de $3p^2P_{3/2}$.

Ces enregistrements ont été effectués point par point à la sortie de la porte "moins" de la détection synchrone. La courbe de la figure 13 montre l'un de ces enregistrements : les barres verticales figurent le bruit. En dépit de l'importance de ce bruit, on constate une résonance à 59 MHz ($\pm 0,5$ MHz). L'absence de symétrie de la courbe par rapport à cette fréquence de résonance signale vraisemblablement soit que la porteuse n'était pas exactement en résonance avec la transition $F=2 \longleftrightarrow F'=3$, soit que la fréquence du laser dérivait au cours de l'enregistrement (fréquence de modulation croissante lors de l'enregistrement).

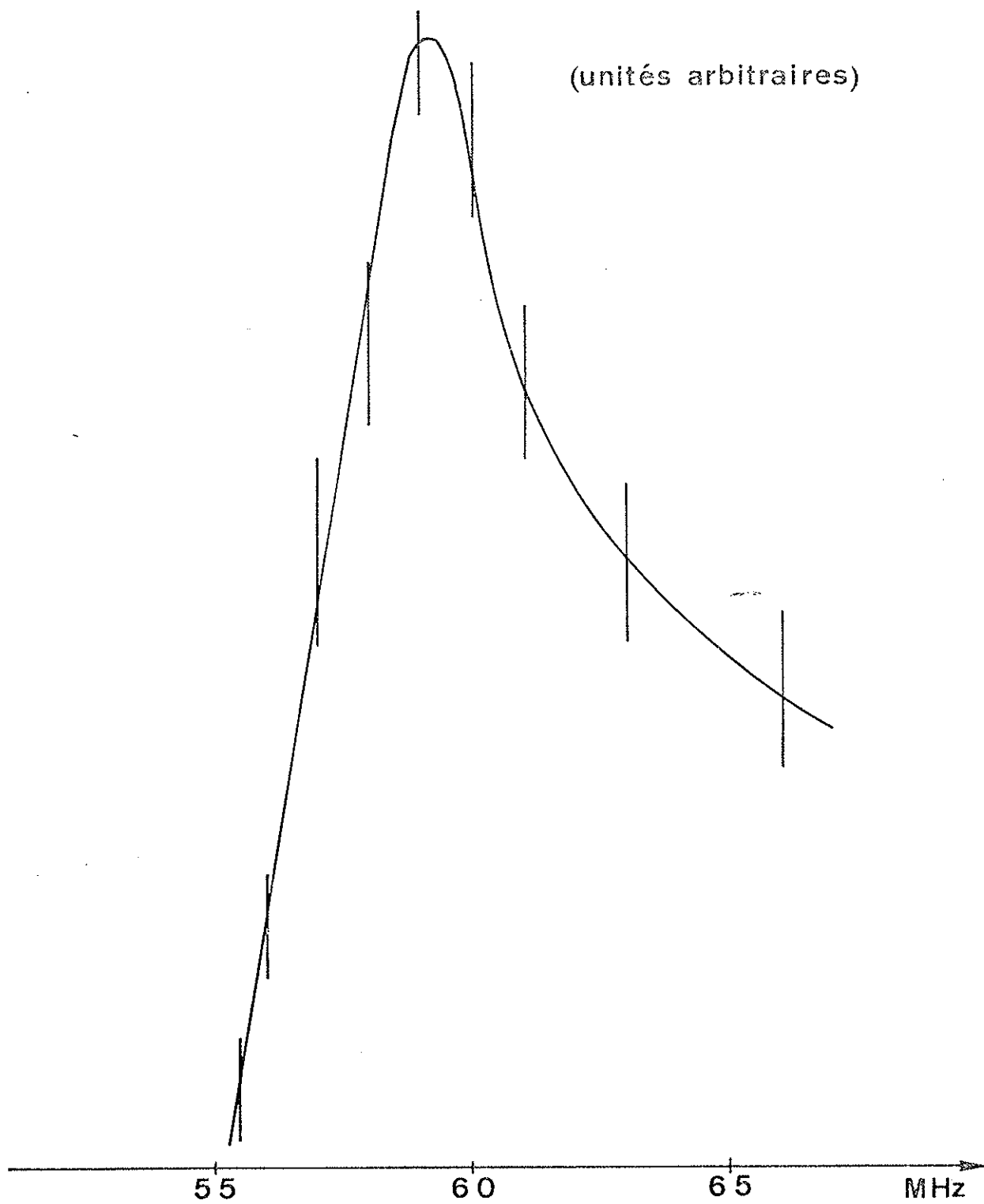


Figure 13 - Enregistrement d'une résonance de modulation sur la raie D_2 .

B. AMELIORATIONS DU DISPOSITIF EXPERIMENTAL.

Les difficultés expérimentales de la méthode envisagée dans le paragraphe précédent, nous ont suggéré des améliorations à apporter au dispositif.

Les difficultés auxquelles on se heurte sont les suivantes :

- Les fréquences élevées auxquelles il faut travailler imposent d'éloigner l'ensemble de détection de l'ensemble de modulation du laser (générateur + cristal).

- L'ensemble de modulation présente dans son principe même plusieurs inconvénients :

- . Il génère deux bandes latérales, l'une des deux étant inutile, voire gênante, et d'intensité inférieure à celle de la porteuse. Signalons toutefois que cette limitation n'est pas fondamentale et qu'il est possible de réaliser une modulation à bande latérale unique d'intensité comparable à celle de la porteuse [13].
- . Avec l'alimentation dont nous disposons, il est impossible de faire des balayages continus de la fréquence. En effet, toute variation de la fréquence de modulation nécessite l'adaptation simultanée du circuit de surtension couplé au cristal électro-optique. Nous réalisons donc les balayages point par point,

c'est-à-dire relativement lentement. L'exploration d'une dizaine de mégaHertz prend plusieurs minutes pendant lesquelles le laser est susceptible de dériver.

Toutes ces difficultés sont liées au fait que l'on fait varier la fréquence de modulation pour explorer une structure hyperfine et non pas, comme dans les expériences de modulation antérieures, le champ magnétique pour explorer une structure Zeeman.

Il est possible d'éviter les problèmes liés à la modulation du laser en remplaçant un laser modulé par deux lasers asservis sur le même "sigmamètre". Les améliorations du dispositif d'excitation se résument à :

- la suppression de tout générateur de haute fréquence ;
- des balayages automatiques, quasi-continus, linéaires sur de larges plages, en fixant l'un des lasers sur n'importe quelle transition.

On peut faire une lecture directe de la différence de fréquence entre les deux lasers en faisant une lecture de la fréquence du signal de battements entre les deux lasers. Ce signal sert également de référence à la détection synchrone.

Le problème qui se pose alors est celui de la cohérence mutuelle des deux lasers. Autrement dit, peut-on, avec les lasers dont nous disposons, observer ce signal de battements ?

Un modèle très simple, où le champ électrique du laser est décrit classiquement avec une amplitude constante et une phase aléatoire, nous donne les premiers éléments de réponse.

Chacun des deux lasers présente une certaine largeur de raie. L'inverse de cette largeur est le temps de cohérence du laser, autrement dit la largeur de la fonction d'autocorrélation du laser.

Plus précisément, pour le laser 1, on définit cette fonction par :

$$G_1(t) = \langle \varepsilon_1(t) \varepsilon_1^*(0) \rangle$$

$$\text{avec } \varepsilon_1(t) = A_1 e^{-i[\Omega_1 t + \Phi_1(t)]}$$

où $\Phi_1(t)$ est la fonction aléatoire sur laquelle on moyenne.

$$G_1(t) = |A_1|^2 \langle e^{-i[\Phi_1(t) - \Phi_1(0)]} \rangle e^{-i\Omega_1 t}$$

$$= g_1(t) e^{-i\Omega_1 t}$$

$$\text{avec } g_1(t) = |A_1|^2 \langle e^{-i[\Phi_1(t) - \Phi_1(0)]} \rangle$$

$$\Phi_1(t) - \Phi_1(0) = \int_0^t \dot{\Phi}_1(t') dt'$$

$$\langle e^{-i[\Phi_1(t) - \Phi_1(0)]} \rangle = 1 - i \langle \int_0^t \dot{\Phi}_1(t') dt' \rangle$$

$$- \frac{1}{2} \langle \int_0^t dt'' \int_0^t dt' \dot{\Phi}_1(t') \dot{\Phi}_1(t'') \rangle + \dots$$

En admettant que les valeurs moyennes des fonctions aléatoires qui sont le produit de $(2p+1)$ fonctions $\dot{\Phi}_1$ sont nulles, il ne reste que les termes pairs du développement. Supposons alors le temps

d'autocorrélation de la phase aléatoire très petit devant les autres temps caractéristiques du système, sauf la période optique. Autrement dit, supposons pour les termes pairs du développement des relations du type :

$$\langle \dot{\Phi}_1(t') \dot{\Phi}_1(t'') \rangle = \frac{2}{\tau_1} \delta(t' - t'') .$$

On a défini alors τ_1 le temps de cohérence du laser 1 puisqu' alors la fonction d'autocorrélation s'écrit :

$$g_1(t) = |A_1|^2 e^{-t/\tau_1} .$$

On définit de la même façon τ_2 , le temps de cohérence du laser 2.

Si, maintenant, on superpose les deux faisceaux lasers supposés indépendants, on détecte l'intensité totale proportionnelle à :

$$|\epsilon_1(t) + \epsilon_2(t)|^2 = |\epsilon_1(t)|^2 + |\epsilon_2(t)|^2 + \epsilon_1(t) \epsilon_2^*(t) + \epsilon_2(t) \epsilon_1^*(t) .$$

Ce qui nous intéresse alors pour définir le temps de cohérence mutuelle τ des deux lasers, c'est la fonction d'autocorrélation du battement des deux lasers, c'est-à-dire des deux derniers termes.

En remarquant que les termes du type $\langle \epsilon_1(t) \epsilon_1(0) \rangle$ s'annulent, on obtient pour cette fonction :

$$g_1(t) g_2(t) 2 \cos(\Omega_2 - \Omega_1)t = 2 |A_1|^2 |A_2|^2 \cos[(\Omega_2 - \Omega_1)t] e^{-t(\frac{1}{\tau_1} + \frac{1}{\tau_2})} .$$

Les deux lasers avec lesquels l'expérience est envisagée sont équivalents et l'on peut admettre pour temps de cohérence mutuelle la

moitié du temps de cohérence propre de chacun des deux lasers, c'est-à-dire $\tau \sim 16$ ns si la largeur de raie de chaque laser est 5 MHz.

Le temps est à comparer, d'une part, avec le temps d'établissement du régime stationnaire et, d'autre part, avec le temps caractéristique de l'évolution de la cohérence σ_{21} , c'est-à-dire $\frac{2\pi}{|\Omega_2 - \Omega_1|}$.

Le temps d'établissement du régime stationnaire pour les atomes est de l'ordre de grandeur de la durée de vie des niveaux excités, à savoir 16 ns. On se trouverait donc dans des conditions tout à fait limites pour réaliser l'expérience. En fait, la largeur de raie du laser, 5 MHz pour ses meilleures performances, est imposée par le "jitter" dû aux fluctuations mécaniques ou thermiques de la cavité. Les fréquences auxquelles se produisent ces fluctuations sont relativement faibles (1 à 10 kHz) si on les compare aux fréquences caractéristiques de l'atome. Cet élargissement ne limite donc pas fondamentalement l'expérience.

Si cette première condition est réalisée, la deuxième condition $\frac{2\pi}{|\Omega_2 - \Omega_1|} \ll \tau$ est a fortiori réalisée dans le cas de nos expériences de modulation, puisque nous choisissons un intervalle de structure hyperfine grand devant la largeur naturelle des niveaux et que nous travaillons près de la résonance ($|\Omega_2 - \Omega_1| \sim |\omega_{21}| \gg \gamma$).

Rien ne s'oppose donc, dans le principe, à la réalisation de l'expérience telle qu'elle a été décrite ci-dessus. Les conditions d'observation seraient toutefois grandement améliorées si l'on s'affranchissait du "jitter" des lasers en agissant sur la bande passante des asservissements. Si l'on ne fait pas cette modification, l'observation de la modulation de la lumière de fluorescence se résume à un problème d'amélioration du rapport signal sur bruit.

Les avantages du dispositif d'excitation par deux lasers semblent donc incontestables et cette méthode paraît bien adaptée à notre problème. La méthode de modulation électro-optique reste intéressante pour une excitation en bande large pour laquelle on peut utiliser les deux bandes latérales et anihiler la porteuse. (Dans ce cas ce n'est pas l'accord des bandes avec chacune des transitions qui importe, mais la fréquence de modulation).

Il faut noter que l'on perd en utilisant deux lasers cohérents une des qualités de la modulation par effet électro-optique : la bonne définition de la fréquence Ω_{21} . Mais, dans la mesure où la largeur naturelle des niveaux est importante (10 MHz pour notre expérience), cet inconvénient n'est pas préoccupant et largement compensé par les avantages cités plus haut.

CONCLUSION

L'objectif du travail qui nous avait été proposé consistait, à l'origine, en une démonstration expérimentale de la possibilité de mesure de petits écarts hyperfins par la méthode des résonances de modulation. Cette méthode spectroscopique, en effet, n'avait été utilisée jusqu'ici, à notre connaissance, que pour des études de structures Zeeman ; la façon la plus simple de réaliser ce type d'expérience étant dans ce cas de fixer la fréquence de modulation de la lumière excitatrice et de balayer le champ magnétique. Dans le cas de l'application à la mesure d'écarts hyperfins, c'est l'atome qui impose la fréquence à laquelle se produit la résonance de sorte que le balayage ne peut être effectué qu'en modifiant la fréquence de modulation de la lumière excitatrice. Il y a là une difficulté purement technique que nous avons résolue par l'utilisation d'un laser accordable couplé à un modulateur électro-optique. Ce dispositif nous a, en particulier, permis de vérifier les effets prévus, tant en ce qui concerne les phénomènes liés à la polarisation suivant laquelle on observe la lumière de fluorescence, qu'à ceux dus par ailleurs à la structure du niveau sur lequel retombe l'atome après fluorescence. Cependant, le dispositif utilisé ne permettait pas un balayage continu de la fréquence et rendait du même coup la méthode difficilement exploitable pour des mesures systématiques. C'est la raison pour laquelle nous avons été amenés à proposer une version plus souple utilisant deux lasers accordables. Toutefois,

quelle que soit la méthode expérimentale utilisée, il est clair que la limite ultime d'application est imposée par le temps de réponse des photodétecteurs, ce qui, dans les meilleurs cas, correspond actuellement à une fréquence n'excédant guère 200 MHz.

C'est dans l'interprétation des phénomènes consécutifs à une excitation par lasers monomodes que nous avons été conduits à examiner, sur un plan théorique, le problème de la réponse du système atomique à ce type d'excitation. Nous avons, d'une façon plus précise, effectué la comparaison des expériences de modulation en excitation monochromatique avec le cas, bien connu antérieurement, de l'excitation en bande large. Un modèle simplifié nous a permis de décrire qualitativement les effets spécifiques de l'excitation monochromatique, effets qui apparaissent lors de désaccords entre les fréquences optiques du champ excitateur et les fréquences des transitions atomiques correspondantes. Le système atomique est soumis à un régime forcé, si bien que les fréquences de résonance ne sont pas les fréquences propres du système. Ces effets, qui n'apparaissent ni lorsque le système évolue librement comme c'est le cas pour les battements quantiques, ni dans le cas d'une excitation en bande large pour laquelle ils sont moyennés, sont donc bien spécifiques de l'excitation en lumière monochromatique modulée.

BIBLIOGRAPHIE

BIBLIOGRAPHIE

- [1] J. Brossel et F. Bitter Phys. Rev. 86 308 (1952).
- [2] M. Broyer Thèse de troisième cycle - Paris VI (1973).
- [3] S. Haroche "Quantum beats and time resolved spectroscopy".
A paraître dans "High Resolution laser spectroscopy" Springer Verlag -
Berlin - Heidelberg - New York,
et les références citées dans cet article.
- [4] E. B. Aleksandrov Opt. Spectr. 14 233 (1963).
- [5] A. Corney and G. W. Series Proc. Phys. Soc. 83 207 (1964).
- [6] A. Corney and G. W. Series Proc. Phys. Soc. 83 213 (1964).
- [7] par exemple : G. S. Agarwal "Quantum Optics". Springer tracts in
modern physics . Springer Verlag - Berlin - Heidelberg - New York (1974).
- [8] B. R. Judd "Operator Techniques in Atomic Spectroscopy".
Mac Graw Hill Book Co. New York (1962).
- [9] A. R. Edmonds "Angular momentum in Quantum Mechanics"
Princeton University Press (1957).
- [10] Manuel Rotenberg, R. Bivins, N. Metropolis, John K. Wooten Jr.
"The 3j and 6j symbols". Crosby Lockwood and son Ltd. (1959).
- [11] S. Liberman et J. Pinard Appl. Phys. Lett. 24 142 (1974).
- [12] P. Juncar et J. Pinard Opt. Comm. 14 438 (1975).
- [13] M. de Beaumont Thèse de troisième cycle - Orsay (1973).

Avant de mettre un point final à cet exposé, je ne saurais manquer d'exprimer ma gratitude à tous ceux qui m'ont permis d'accomplir ce travail dans de bonnes conditions.

Je remercie très vivement M. le Professeur P. JACQUINOT qui m'a accueillie au Laboratoire Aimé Cotton.

Ce travail a été effectué sous la direction de J. PINARD à qui je sais gré, en particulier, du soutien effectif qu'il m'a apporté sur le plan expérimental.

Je dois à S. FENEUILLE mon initiation aux calculs théoriques. Il m'a apporté une aide précieuse dans l'élaboration du chapitre correspondant et je tiens à le remercier d'avoir accepté de relire mon manuscrit. La rédaction définitive doit beaucoup à ses suggestions et critiques constructives.

Que S. LIBERMAN et A. CRUBELLIER, qui n'ont pas épargné non plus leur peine dans ce domaine, veuillent trouver ici le témoignage amical de ma reconnaissance.

Je remercie également tout le personnel technique, administratif et scientifique du laboratoire dont la collaboration m'a été nécessaire et fructueuse. Citons parmi d'autres, H. T. DUONG et J.-L. VIALLE qui m'ont initiée à l'utilisation du jet atomique ; C. MILET qui m'a apporté son efficacité à résoudre bien des problèmes ; les électroniciens J. DURAND et G. MICHEL qui ont conçu la détection synchrone à portes ; sans oublier G. FONTAINE, dont je ne serai pas la première à vanter les mérites, pour la dactylographie de ce mémoire, ni M. REY pour les illustrations photographiques qui y figurent.

Enfin je tiens à remercier M. le Professeur A. ALLISY, de l'Institut National de Métrologie, qui m'a laissé la liberté de terminer ce travail.