

ORSAY
n° d'ordre : 1872

THÈSE

DE DOCTORAT D'ÉTAT ÈS-SCIENCES PHYSIQUES

PRÉSENTÉE À L'UNIVERSITÉ DE PARIS-SUD

CENTRE D'ORSAY

PAR

Jean-Louis PICQUÉ

LABORATOIRE AIMÉ COTTON

C. N. R. S.

POUR OBTENIR

LE GRADE DE DOCTEUR ÈS-SCIENCES

INTERACTION RESONNANTE ENTRE UN JET ATOMIQUE
ET UN RAYONNEMENT LASER MONOCHROMATIQUE ACCORDABLE,
ET METHODES DE SPECTROSCOPIE OPTIQUE A HAUTE RESOLUTION.

SOUTENUE LE 21 Juin 1977 DEVANT LA COMMISSION D'EXAMEN

MM. P. JACQUINOT

J. BROSSEL

C. COHEN-TANNOUJJI

S. FENEUILLE

R. KLAPISCH

A. KASTLER

Président

Examineurs

Invité

24-I (106)

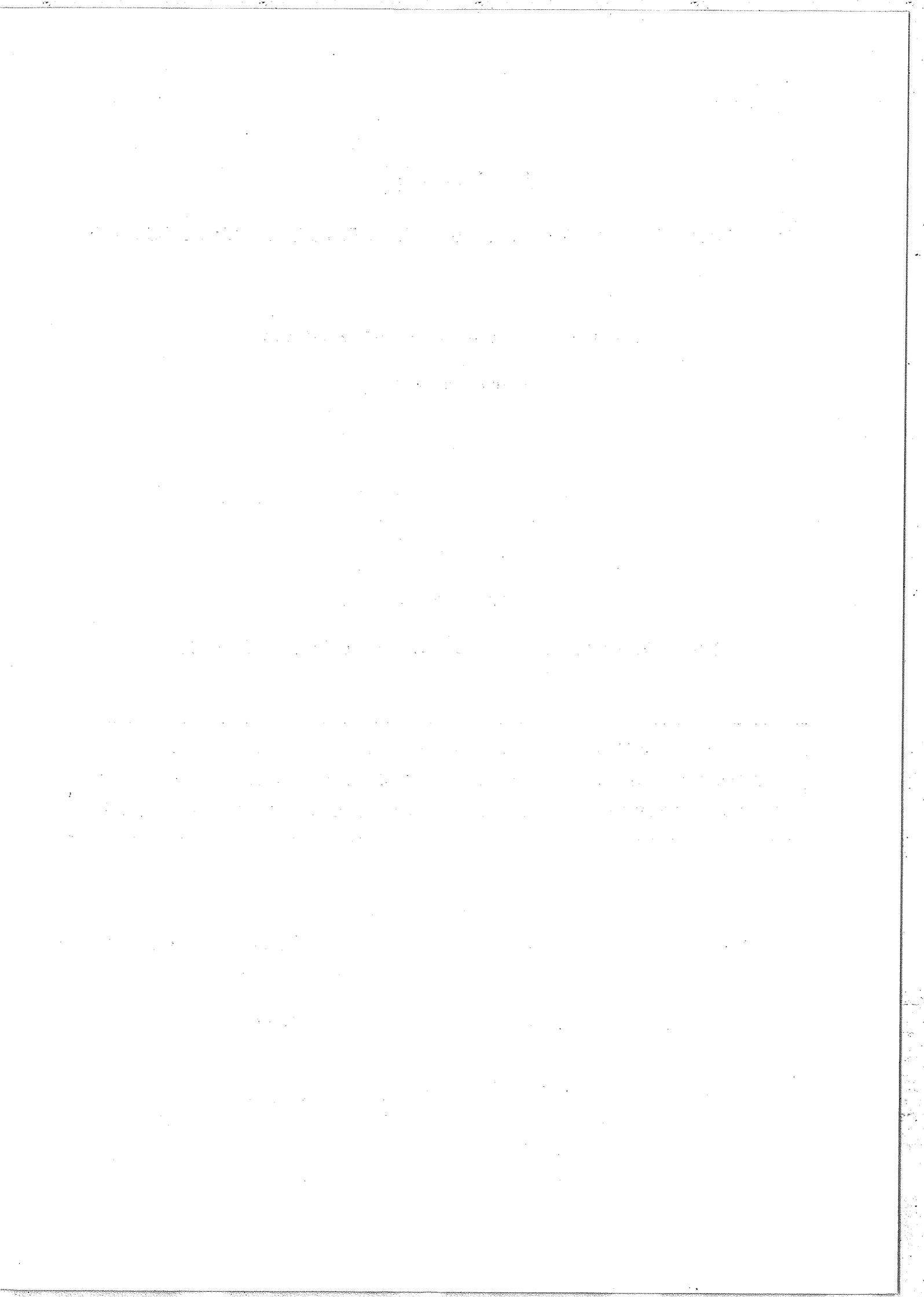


TABLE DES MATIERES

<u>INTRODUCTION GENERALE</u>	1
 <u>Chapitre I : LES LASERS ACCORDABLES</u>	 11
<u>INTRODUCTION</u>	13
A - <u>LE LASER à GaAs</u>	15
1 - Introduction	15
2 - Principe des lasers à jonction	17
3 - Propriétés typiques des lasers à GaAs	19
3-1 Caractères généraux	19
3-2 Le seuil de l'oscillation laser	21
3-3 Influence de la température sur la longueur d'onde	23
4 - Le cryostat à température variable	26
4-1 Motivations	26
4-2 Caractéristiques générales du cryostat	27
4-3 Description du cryostat	28
4-4 Fonctionnement du cryostat	31
5 - Le laser à GaAs continu monomode	33
5-1 Principe de l'utilisation du laser	33
5-2 Dispositif expérimental	34
5-3 Accord et oscillation monomode	36
5-4 Stabilité et balayage de la fréquence	39
5-5 Discussion	53

B - <u>LE LASER à COLORANT</u>	55
1 - Introduction	55
2 - Stabilisation et balayage de la fréquence	58
2-1 Référence interférométrique	58
2-2 Référence atomique	61
<u>COMPARAISON DU LASER à COLORANT ET DU LASER à GaAs</u>	64
<u>BIBLIOGRAPHIE DU CHAPITRE I</u>	67

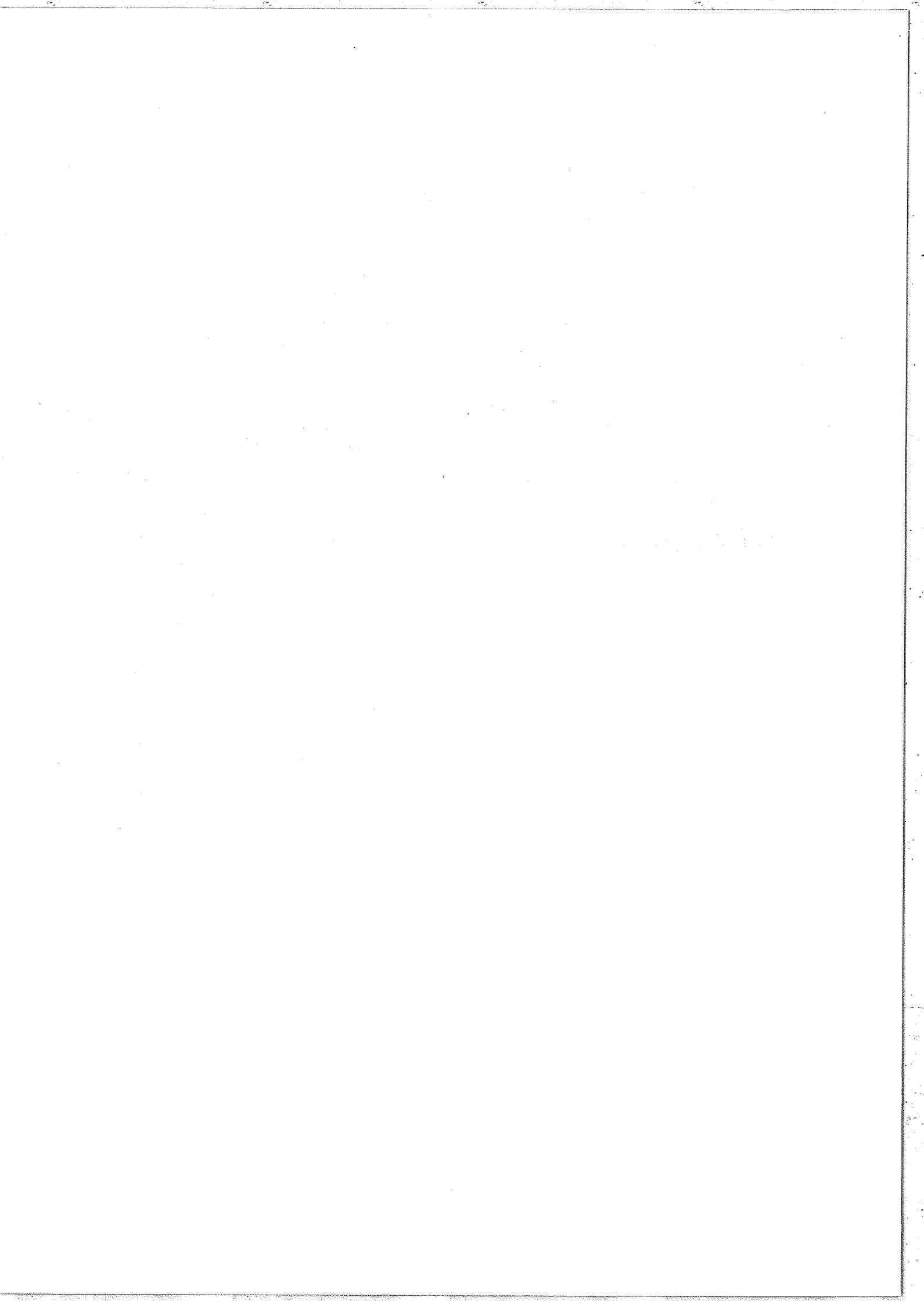
Chapitre II : LES METHODES DE DETECTION DE LA
RESONANCE OPTIQUE SUR UN JET ATOMIQUE
ET LEUR APPLICATION A LA SPECTROSCOPIE
LASER A HAUTE RESOLUTION

.....	71
<u>INTRODUCTION</u>	75
<u>UNE EXPERIENCE SANS LASER</u>	79
1 - Principe de l'expérience	80
2 - Affinement par absorption et balayage électrique	82
3 - Résultats et discussion	83
<u>LES TRANSITIONS ETUDIEES</u>	86
A - <u>LA METHODE DE DETECTION OPTIQUE</u>	89
1 - Introduction	89
2 - Dispositif expérimental	91
3 - Applications spectroscopiques	93
3-1 Structure hyperfine du niveau $6^2P_{3/2}$ du césium	93
3-2 Structure hyperfine du niveau $5^2S_{1/2}$ du sodium	94
4 - Effets de puissance	97
4-1 Modèle de l'atome à 2 niveaux	98
4-2 Modification des intensités par pompage hyperfin	104
4-3 Elargissement radiatif	108

B - <u>LA METHODE DE DEVIATION MAGNETIQUE</u>	111
1 - Introduction	111
2 - Détection de la résonance optique	114
3 - Description de l'appareillage	117
3-1 Généralités	117
3-2 Le vide	121
3-3 Le four, les fentes et le détecteur	122
3-4 Les aimants défecteurs	124
3-5 La région d'interaction	128
3-6 Le spectromètre de masse	129
3-7 Traitement du signal	132
4 - Ordres de grandeur expérimentaux	134
4-1 Jet non défléchi	134
4-2 Expérience de résonance optique (Montage "flop-in")	135
4-3 Comparaison avec d'autres techniques de déviation magnétique	140
5 - Applications spectroscopiques	143
5-1 Résultats expérimentaux	143
5-2 Intensité des raies	145
5-3 Elargissement radiatif	152
C - <u>LA METHODE DE PHOTO-DEVIATION</u>	155
1 - Mise en évidence et étude expérimentale de la photo-déviaton	157
Article : Déviation et élargissement d'un jet atomique par effet de recul accompagnant l'absorption et l'émission d'un photon	159
2 - Application spectroscopique de la photo-déviaton ..	165
Article : Application de la déviation d'un jet atomique par un rayonnement optique résonnant à la spectroscopie à haute résolution	167
 <u>CLASSIFICATION DES METHODES DE SPECTROSCOPIE OPTIQUE</u>	
<u>"SANS EFFET DOPPLER"</u>	170
<u>BIBLIOGRAPHIE DU CHAPITRE II</u>	173

Chapitre III : <u>EFFETS DE CROISEMENTS DE NIVEAUX</u>	
<u>EN CHAMP NUL</u>	177
<u>INTRODUCTION</u>	181
A - <u>ETUDE THEORIQUE</u>	185
1 - Position du problème	185
2 - Les "Equations de Bloch optiques"	187
3 - Evolution des éléments de la matrice densité	189
3-1 Rappels	189
3-2 Equations développées	190
4 - Exemple de la transition $J_b=2 \leftrightarrow J_a=1$	194
4-1 Ecriture des équations	194
4-2 Analyse de l'interaction à faible intensité du rayonnement	196
4-3 Résultats obtenus à forte intensité du rayonnement	214
5 - Cas d'un système "ouvert"	215
5-1 Généralisation des équations précédentes	215
5-2 Application à une transition hyperfine du sodium	217
5-3 Discussion des résultats	219
B - <u>ETUDE EXPERIMENTALE</u>	223
1 - Détection optique (effet Hanle)	223
1-1 Principe de l'expérience	223
1-2 Signal de détection	224
1-3 Description de l'expérience	226
1-4 Description et discussion des résultats	230
2 - Détection non-optique	238
2-1 Principe de l'expérience	238
2-2 Signal de détection	238
2-3 Description de l'expérience	239
2-4 Description et discussion des résultats	242
<u>BIBLIOGRAPHIE DU CHAPITRE III</u>	247

Chapitre IV : <u>EFFET STARK DYNAMIQUE</u>	249
A - <u>RAYONNEMENT DE FAIBLE INTENSITE</u> :	
<u>LE PHENOMENE DE "LIGHT-SHIFT"</u>	251
Article : Mesure précise des déplacements de la fréquence de la transition hyperfine 0-0 du césium induits par un laser à GaAs monomode	253
B - <u>RAYONNEMENT DE FORTE INTENSITE</u> :	
<u>L'ANALOGUE OPTIQUE DE L'EFFET AUTLER-TOWNES</u>	261
Article : Observation directe de l'effet Autler- Townes dans le domaine optique	263
 <u>CONCLUSION GENERALE</u>	 269
 <u>BIBLIOGRAPHIE DE LA CONCLUSION</u>	 273
 <u>LISTE DE PUBLICATIONS</u>	 275



INTRODUCTION GENERALE

Le travail décrit dans ce mémoire résulte de l'utilisation conjointe des jets atomiques et des lasers accordables. Les propriétés qui caractérisent les jets sont la directivité et la faible densité des atomes. Avec les lasers accordables, nous avons disposé de sources lumineuses continues, intenses, de faible largeur spectrale, susceptibles d'être mises en résonance avec certaines transitions atomiques. En illuminant à angle droit un jet atomique par un faisceau laser, il est possible de supprimer presque totalement l'effet Doppler. Une application immédiate est la spectroscopie à haute résolution. Plus généralement, l'ensemble expérimental est adapté à l'étude de l'interaction matière-rayonnement dans des conditions particulièrement simples et bien définies : atomes libres, rayonnement monochromatique cohérent, résonnant ou quasi-résonnant.

Notre travail a progressé suivant plusieurs grandes lignes :

- développement des techniques de jet atomique et de laser accordable,
- mise au point de nouvelles méthodes (à détection non-optique) de spectroscopie optique "sans effet Doppler",
- mise en évidence et interprétation d'effets nouveaux dans l'interaction résonnante atomes-rayonnement, dans le domaine optique.

Quoique ces différents aspects : instrumental, méthodologique, fondamental, soient étroitement imbriqués, nous les abordons pour l'essentiel dans cet ordre au cours de l'exposé.

LASERS ACCORDABLES.

Le véritable point de départ de notre étude a coïncidé avec l'avènement des lasers accordables. Dans le but d'alléger le reste de l'exposé, nous avons regroupé la description des sources lumineuses au Chapitre I.

Nous avons contribué au développement initial et aux premières applications du laser à colorant organique continu monomode. Ce type de laser fait déjà l'objet d'un usage relativement courant. Aussi, nous insistons davantage sur le laser semi-conducteur à arséniure de gallium. La longueur d'onde d'un laser à jonction dépend de sa température. Nous décrivons le système cryogénique qui nous a permis de réaliser un fonctionnement continu monomode du laser à la longueur d'onde choisie. Le déplacement fin du mode unique est effectué par variation du courant de la diode.

Pour les deux types de laser, nous décrivons les montages que nous avons employés pour stabiliser le laser par rapport à une cavité passive dans les expériences exigeant un déplacement de fréquence ou par rapport à la transition atomique étudiée dans les expériences effectuées à fréquence fixe. Nous donnons les caractéristiques typiques que nous avons observées en régime "libre" ou "asservi". En particulier, nous avons pu obtenir avec le laser à GaAs des performances comparables à celles du laser à colorant.

Nous avons le plus souvent choisi notre système atomique parmi les niveaux des raies de résonance D_1 et D_2 du sodium ($5890 - 96 \text{ \AA}$), situées dans la partie centrale du spectre du colorant rhodamine 6G. Cependant, en accordant le laser à GaAs à la raie D_2 du césium (8521 \AA), nous avons étendu nos expériences à un autre atome alcalin. Le pompage optique d'un jet atomique de césium présente d'ailleurs un intérêt spécifique dans la mesure où il peut trouver une application dans la réalisation d'étalons primaires de fréquence.

METHODES DE DETECTION DE LA RESONANCE OPTIQUE
ET APPLICATIONS SPECTROSCOPIQUES.

Dans les expériences décrites au Chapitre II, la fréquence du laser (colorant ou GaAs) est déplacée continûment à travers la structure hyperfine des raies d'absorption des atomes du jet (Na ou Cs). Un signal de résonance optique est observé chaque fois que la fréquence du laser coïncide avec la fréquence de Bohr d'une transition atomique. En enregistrant ce signal en fonction de la fréquence excitatrice, on obtient un spectre dans lequel la largeur de raie n'est en théorie limitée que par la largeur naturelle ($\gamma \sim 10$ MHz) liée à la durée de vie de l'état excité. En pratique, elle est légèrement supérieure à cause des fluctuations de fréquence du laser et de l'effet Doppler résiduel.

En même temps que quelques groupes étrangers, nous avons dès 1973 démontré les possibilités de la spectroscopie par jet atomique et laser accordable en résolvant la structure hyperfine des raies de résonance du sodium. La largeur de raie observée étant inférieure à 20 MHz. De tels résultats n'étaient jusqu'alors accessibles qu'à la spectroscopie des radiofréquences. Nous donnons d'autres exemples d'applications spectroscopiques.

Nous avons employé pour engendrer le signal de résonance optique plusieurs méthodes, que l'on peut associer à l'un des effets qui accompagnent l'absorption d'un photon par un atome :

- Fluorescence		Détection optique
- Transfert de moment angulaire	Méthode de déviation magnétique	}
- Transfert de quantité de mouvement	Méthode de photo-déviation	
		Détection non-optique

Dans la première méthode, on mesure la fluorescence totale des atomes dans la direction orthogonale au jet atomique et au faisceau laser (on peut aussi mesurer l'absorption de ce dernier). Les deux autres méthodes sont fondées sur la modification du comportement des atomes eux-mêmes, à la suite de leur interaction résonnante avec les photons.

La méthode de déviation magnétique est l'analogue optique de la méthode de résonance magnétique de Rabi. Elle utilise le changement de trajectoire dans un champ magnétique non-uniforme des atomes qui ont subi un renversement de moment magnétique dans leur interaction avec le faisceau laser.

La méthode précédente n'est valable que pour les atomes d'état fondamental paramagnétique. Cette limitation ne s'applique pas à la méthode de photo-déviation, qui utilise le recul subi par les atomes lors de l'absorption résonnante d'un photon. Nous avons pu mettre en évidence nettement la déviation et l'élargissement de la distribution spatiale d'un jet atomique par "pression de radiation", même dans le cas où les atomes ne sont excités qu'une fois en moyenne (leur déviation est alors de l'ordre de 10^{-5} radians).

La mise au point de méthodes de détection non-optique de la résonance optique avait été la motivation initiale de notre travail. En effet, l'observation des atomes plutôt que des photons autorise l'emploi de techniques de détection très sensibles (comptage d'ions ou de désintégrations radioactives) dans l'étude d'espèces atomiques disponibles en faible quantité.

Par rapport à l'une ou l'autre des méthodes de spectroscopie optique "sans effet Doppler" qui se sont développées parallèlement (absorption saturée, absorption multiphotonique, battements quantiques), les méthodes de jet atomique présentent plusieurs avantages : Elles ne

nécessitent pas une interaction non-linéaire, ne produisent pas de résonances parasites ou d'élargissement des raies par collisions.

Nous avons d'ailleurs étudié les déformations du spectre qui apparaissent lorsqu'on quitte le domaine de la réponse linéaire des atomes : modification des intensités relatives des raies par pompage optique hyperfin, élargissement radiatif par saturation. Les chapitres suivants sont néanmoins consacrés à une étude plus fine de la perturbation du système atomique par le rayonnement monochromatique résonnant. L'un de ces chapitres traite de problèmes de "pompage optique", liés à la structure Zeeman des niveaux, l'autre est relatif à la spectroscopie de "l'atome habillé" par les photons du champ laser.

EFFETS DE CROISEMENTS DE NIVEAUX EN CHAMP NUL.

Dans les expériences exposées au Chapitre III, la fréquence du laser est fixée et on varie le champ magnétique statique appliqué dans la région d'interaction. Ces expériences ont été effectuées sur diverses transitions hyperfines d'un jet de sodium, pompées par le laser à colorant en polarisation linéaire σ (perpendiculaire au champ magnétique).

Pour l'étude théorique, nous avons employé le formalisme de la matrice densité et traité le rayonnement comme une onde classique. Dans le cas d'un rayonnement monochromatique, il se produit une

oscillation cohérente à la fréquence de Rabi Ω entre l'état fondamental et l'état excité. Il est alors nécessaire de tenir compte des éléments non-diagonaux de la matrice densité entre ces états (cohérences optiques). Les signaux de détection s'expriment en fonction des éléments de matrice internes à l'état excité ou à l'état fondamental, diagonaux (populations des sous-niveaux Zeeman) ou non-diagonaux (cohérences Zeeman). Nous montrons comment se construisent les cohérences Zeeman et se modifient les populations lorsque l'intensité lumineuse croît, et comment ces grandeurs dépendent du champ magnétique. Nous mentionnons les différences importantes avec le cas d'un rayonnement de grande largeur spectrale, de faible intensité (source classique) ou de forte intensité (laser multimode).

Dans les expériences de détection optique, nous avons adopté le montage bien connu de l'effet Hanle. On enregistre cette fois la lumière de fluorescence émise en polarisation linéaire σ en fonction du champ magnétique. Alors qu'avec une source classique le signal varie comme l'alignement, nous montrons que les populations de l'état excité contribuent ici de façon importante au signal. A basse intensité du faisceau laser, nous avons observé une résonance de largeur inférieure à γ . Cette résonance est liée à l'évolution des cohérences optiques et traduit le désaccord du laser par effet Zeeman. A forte intensité, la résonance initiale s'élargit et il s'y superpose une résonance très étroite. Cette dernière a pour origine la précession de Larmor de l'alignement de l'état fondamental et sa largeur est de l'ordre de grandeur de l'inverse du temps de transit des atomes à travers le faisceau lumineux. Les enregistrements expérimentaux sont comparés à des courbes théoriques établies en tenant compte du pompage hyperfin et de la durée limitée de l'interaction.

Grâce au comportement résonnant des populations, nous avons pu observer des effets de croisements de niveaux en détection non-optique. Nous avons pour cela employé la méthode de type Rabi, sensible aux modifications des populations de l'état fondamental. On enregistre

maintenant le nombre d'atomes détectés en fonction du champ magnétique. Alors qu'avec une source classique aucune variation ne se produirait, nous avons obtenu plusieurs résonances superposées. La plus étroite est la manifestation d'un moment hexadécapolaire électrique induit par le rayonnement dans le niveau hyperfin $F=2$ de l'état fondamental.

EFFET STARK DYNAMIQUE.

Les expériences dont nous rendons compte au Chapitre IV consistent à sonder à l'aide d'un second rayonnement la modification du spectre d'absorption au voisinage d'une transition partageant un niveau avec la transition pompée par le laser. A faible intensité du faisceau laser, la fréquence de la transition-sonde est déplacée : Il s'agit du phénomène de "light-shift", observé auparavant avec des lampes spectrales. A forte intensité, il se produit un dédoublement de la transition-sonde : Ce phénomène est analogue à l'effet Autler-Townes, observé antérieurement dans le domaine des radiofréquences. Vis-à-vis de l'amplitude du champ électrique oscillant, le "light-shift" se comporte comme un effet Stark quadratique et l'effet Autler-Townes comme un effet Stark linéaire. A résonance exacte, le premier s'annule alors que le second donne lieu à un doublet symétrique de séparation 2Ω .

Expérimentalement, nous avons étudié le "light-shift" de la transition hyperfine micro-onde de l'état fondamental du césium. Il était produit par le laser à GaAs, dont la fréquence était maintenue à proximité de

l'une des composantes hyperfines de la raie D_2 . L'utilisation d'un laser monomode accordable nous a permis de mesurer le "light-shift" en fonction de la fréquence du rayonnement optique, pour diverses intensités de ce dernier. Nous avons ainsi obtenu des courbes du type "courbe de dispersion" en bon accord avec les prévisions théoriques.

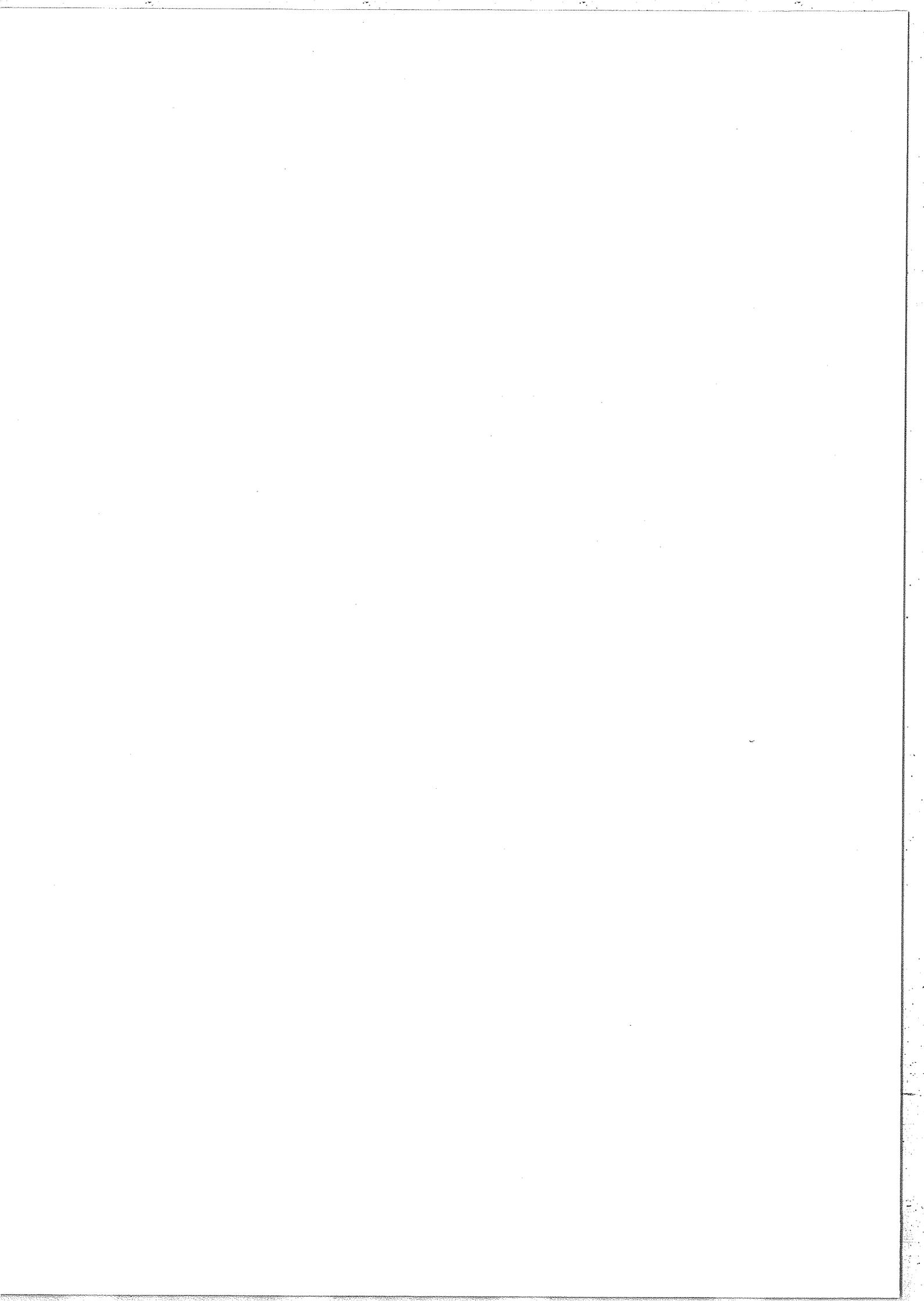
Pour la mise en évidence de l'effet Autler-Townes dans le domaine optique, nous avons effectué une expérience d'excitation en deux étages. La fréquence d'un premier laser à colorant délivrant un faisceau intense était verrouillée à une composante hyperfine de la raie D_1 du sodium. Le faisceau-sonde peu intense était fourni par un second laser à colorant, dont la fréquence était déplacée au voisinage d'une transition vers un niveau supérieur. On enregistrait simultanément la fluorescence issue de ce niveau. Nous avons clairement observé le dédoublement et vérifié approximativement sa proportionnalité à la racine carrée de la puissance transportée par le faisceau intense.

NOTE PRATIQUE.

Le mémoire est divisé en chapitres (repérés par des chiffres romains) composés de sections (repérées par des lettres majuscules). La numérotation des paragraphes, équations, figures et références à l'intérieur de chacun des chapitres est indépendante. Lorsqu'on se réfère à un paragraphe, équation ou figure d'un chapitre différent, le numéro est précédé du chiffre romain affecté à ce chapitre. Les références à nos propres publications sont notées en chiffres romains.

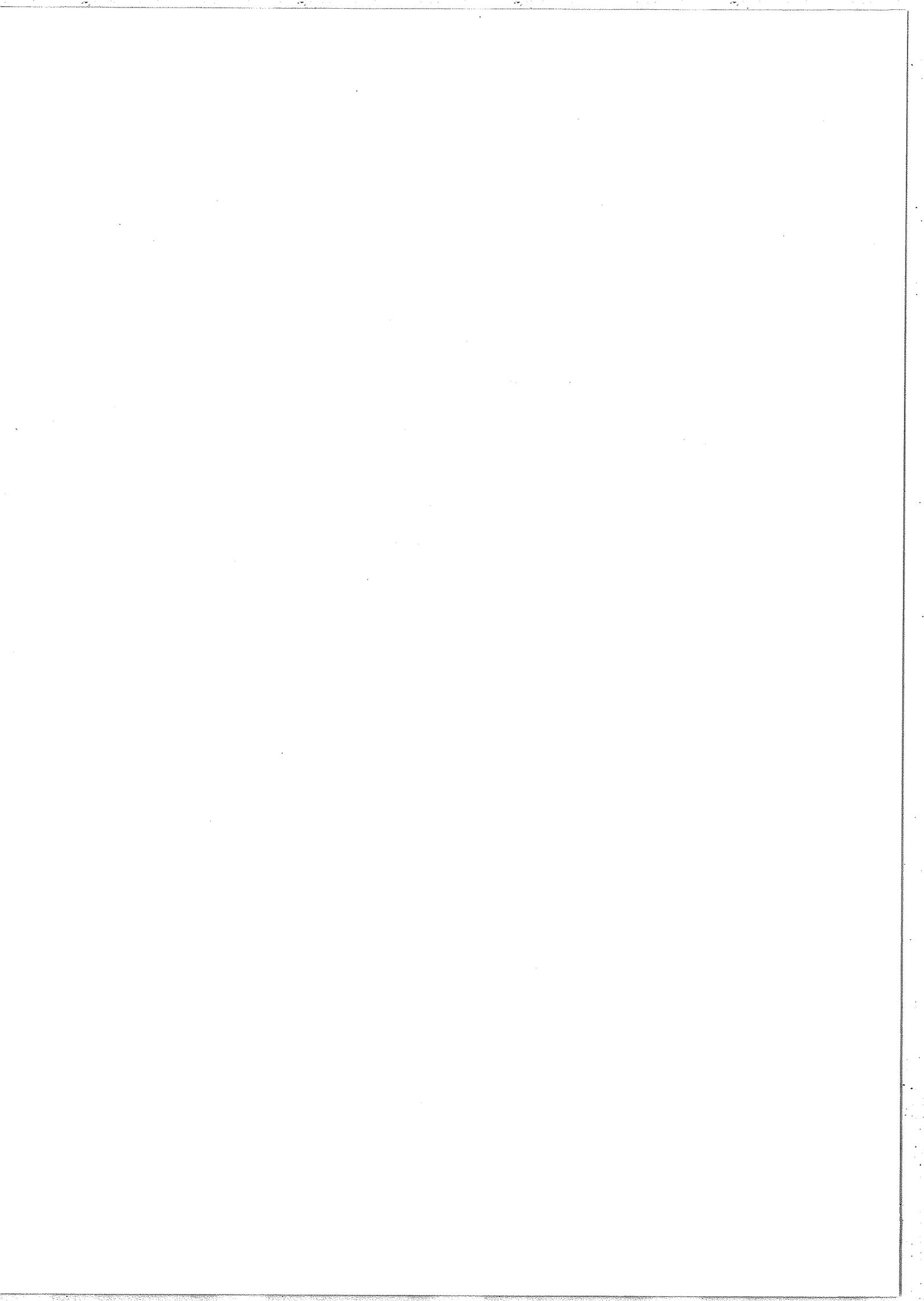
Des introductions aux différents chapitres et sections complètent l'introduction générale. Elles fournissent quelques éléments historiques et permettent de placer notre travail dans son contexte.

La Section C du Chapitre II et les Sections A et B du Chapitre IV sont constituées par des articles publiés. Les sujets correspondants sont ainsi traités de façon moins détaillée que les autres sujets abordés dans le mémoire. Par exemple, ce choix ne nous a pas permis de présenter nos études théoriques de la modification de la distribution spatiale des atomes dans une expérience de photo-déviaton (II-C) ou de l'influence des niveaux adjacents et du pompage optique dans le système atomique utilisé pour la mise en évidence de l'effet Autler-Townes optique (IV-B). Ces études devraient faire l'objet de publications ultérieures. D'autres aspects de notre travail n'entrent pas dans le cadre de cet exposé, mais ont déjà été publiés (voir la liste de publications figurant à la fin du mémoire).



Chapitre I

LES LASERS ACCORDABLES



INTRODUCTION

L'avènement récent des lasers accordables a suscité un renouveau spectaculaire en physique atomique dans des domaines tels que la spectroscopie optique à haute résolution ou l'étude de l'interaction matière-rayonnement [1, 2, XII]. Jusqu'alors, l'utilisation des lasers était en effet limitée à l'étude de transitions donnant lieu elles-mêmes à l'oscillation laser ou bénéficiant d'une coïncidence accidentelle de longueur d'onde (ce dernier cas étant beaucoup plus rare dans les spectres atomiques que dans les spectres moléculaires).

Nous avons en fait mis au point les techniques de détection non-optique de la résonance optique avant de pouvoir disposer d'un laser accordable [I, II]. Mais nos expériences préliminaires avaient montré que leurs possibilités d'application à la spectroscopie à haute résolution à partir de sources lumineuses conventionnelles étaient limitées. Cela nous a conduits à nous intéresser très tôt au laser à colorant organique. Nous avons d'abord testé sur l'exemple des raies de résonance du sodium les différentes méthodes de spectroscopie par jet atomique et rayonnement monochromatique accordable (Chap. II). La puissance fournie par le laser à colorant continu dans un seul mode étant largement suffisante pour saturer les transitions du sodium, nous avons également utilisé ce laser pour étudier les effets produits sur un système atomique, au voisinage de la résonance, par un rayonnement monochromatique, cohérent, intense (Chap. III, IV).

Pendant quelques années, le laser à colorant n'avait pu être employé de façon satisfaisante que dans le domaine spectral d'émission de la rhodamine 6G (environ $5700 - 6300 \overset{\circ}{\text{Å}}$). Les expériences de physique atomique étaient pratiquement limitées au sodium. En faisant

du laser à GaAs un instrument adapté à la spectroscopie à haute résolution, nous avons pu compléter notre étude sur l'exemple du césium. A l'heure actuelle, grâce en particulier à la technique du "jet-stream", le domaine spectral couvert par les lasers à colorant en régime continu s'est considérablement agrandi [3, 4]. Toutefois, les lasers à GaAs et plus généralement à semi-conducteur étendent largement ce domaine dans l'infra-rouge.

A - LE LASER A GaAs .

1 - INTRODUCTION.

La possibilité d'obtenir une émission cohérente à partir de semi-conducteurs avait été analysée [5, 6] bien avant l'existence du premier laser. L'effet laser dans les semi-conducteurs a été observé avec des diodes à GaAs dès 1962, indépendamment par trois groupes américains [7-9]. Depuis, ces lasers ont été le plus souvent utilisés en impulsions et dans des applications telles que les communications.

Dans les premières applications des lasers à GaAs en physique atomique, la mise en coïncidence avec des raies du césium [10-13] ou de l'argon [14] était réalisée au cours d'un balayage très rapide de fréquence. Celui-ci était produit par des impulsions de courant de courte durée ($\sim \mu s$) engendrant une variation brutale de température. Ces impulsions de courant étaient superposées à un courant continu [11, 12] ou même appliquées seules [10, 13, 14]. Dans ce dernier cas, elles avaient pour double rôle de produire l'émission laser et la

variation de longueur d'onde. Plus récemment, les lasers oscillant en régime continu ont permis l'excitation de la raie D_2 au cours d'un balayage lent produit par une rampe de courant [15] ou à fréquence fixe [16]. Par ailleurs, des raies du xénon ont été observées à l'aide d'un balayage par pression [17]. Ces diverses expériences ont été effectuées à des températures voisines de celle de l'azote liquide (77 K).

Pour notre part, nous avons mis au point un cryostat à température variable à courant d'hélium gazeux [VI]. Le réglage grossier de la longueur d'onde et la sélection d'un mode d'oscillation unique sont effectués par action indépendante sur la température du gaz et le courant continu injecté dans la jonction. Pour une diode donnée, le domaine spectral couvert est de l'ordre de 100 \AA . Par variation fine du courant injecté, il est possible de déplacer continûment la fréquence d'un même mode sur une plage allant jusqu'à 30 GHz. Nous avons également tiré parti de la relation courant-fréquence pour asservir le laser, et obtenir une stabilité en fréquence de l'ordre de 1 MHz [VII]. Divers tests du fonctionnement du laser ont été fournis par l'excitation de la raie D_2 du césium [V, XIII].

2 - PRINCIPE DES LASERS A JONCTION.

Dans les lasers à semi-conducteur, l'inversion de population est produite entre la bande de conduction et la bande de valence. Supposons que l'on puisse préparer un semi-conducteur dans la situation représentée par la Fig. 1 : tous les états de la bande de conduction sont remplis au-dessous d'un niveau E_{Fc} et tous les états de la bande de valence sont vides au-dessus d'un niveau E_{Fv} . Si on appelle E_g le gap du semi-conducteur, la condition d'amplification d'un rayonnement de pulsation ω est alors :

$$E_g < \hbar\omega < E_{Fc} - E_{Fv} \quad (1)$$

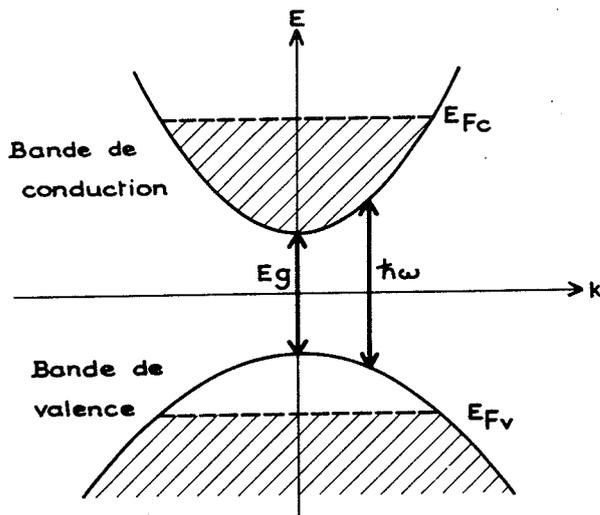


Fig. 1 - Inversion de population dans un semi-conducteur.

En réalité, à température absolue non nulle, les électrons et les trous sont répartis autour des quasi-niveaux de Fermi E_{Fc} et E_{Fv} suivant la distribution de Fermi-Dirac. Cependant, Bernard et Durrafourg [18] ont montré que la condition d'amplification (1) reste valable à toute température.

Il existe plusieurs moyens de réaliser l'inversion de population, tels que le bombardement électronique ou le pompage optique. Le moyen le plus courant consiste à injecter dans le sens direct de la diode un courant électrique suffisamment intense. La Fig. 2-a montre le diagramme d'énergie d'une jonction p-n. Si l'on applique une tension V à cette jonction ($eV \approx E_g$), on crée une zone dans laquelle des électrons et des trous existent simultanément (Fig. 2-b). C'est dans cette "zone active" que l'émission stimulée peut prendre naissance.

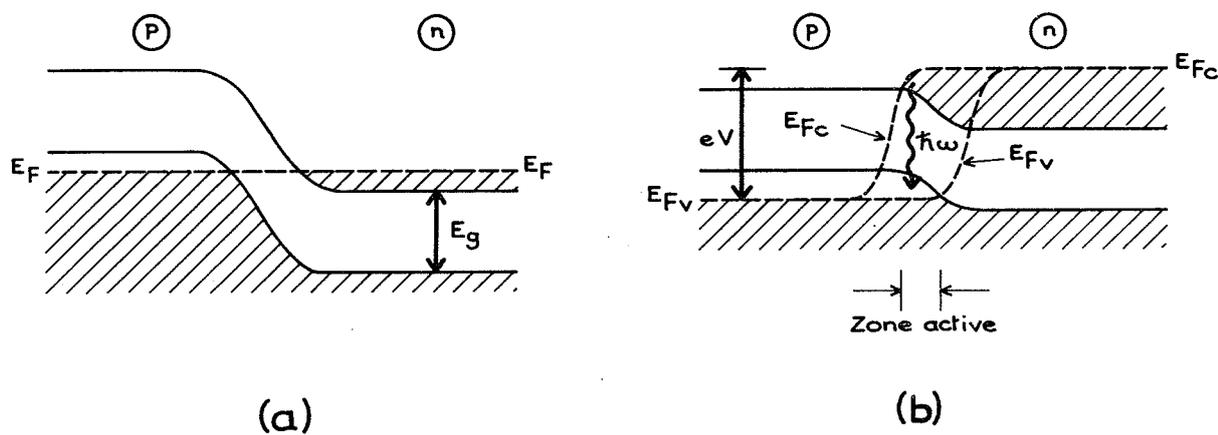


Fig. 2 - Diagramme d'énergie d'une jonction p-n.
 (a) $V = 0$; (b) $V \approx E_g/e$: la population est inversée au voisinage de la jonction.

3 - PROPRIETES TYPIQUES DES LASERS A GaAs .

Nous nous limiterons essentiellement ici aux propriétés que nous avons eu l'occasion d'observer couramment. Pour les autres, nous indiquerons quelques références. Il existe dans la littérature des revues plus complètes sur les lasers à GaAs [19-21], qui présentent un point de vue différent.

3-1 CARACTERES GENERAUX.

Un laser à GaAs apparaît grossièrement (Fig. 3) comme un système de dimensions très réduites ($\sim 100 \mu\text{m}$) capable de convertir de l'énergie électrique en énergie lumineuse avec un rendement d'environ 10%. Ce système émet un rayonnement cohérent de longueur d'onde voisine de 8500 \AA à la température de l'azote liquide et de puissance pouvant atteindre l'ordre de grandeur du watt en régime continu. L'effet laser est obtenu par injection de courant à de très fortes densités allant jusqu'à 10^5 A/cm^2 . La dissipation d'énergie importante qui en résulte nécessite souvent le refroidissement du cristal et le fonctionnement en impulsions.

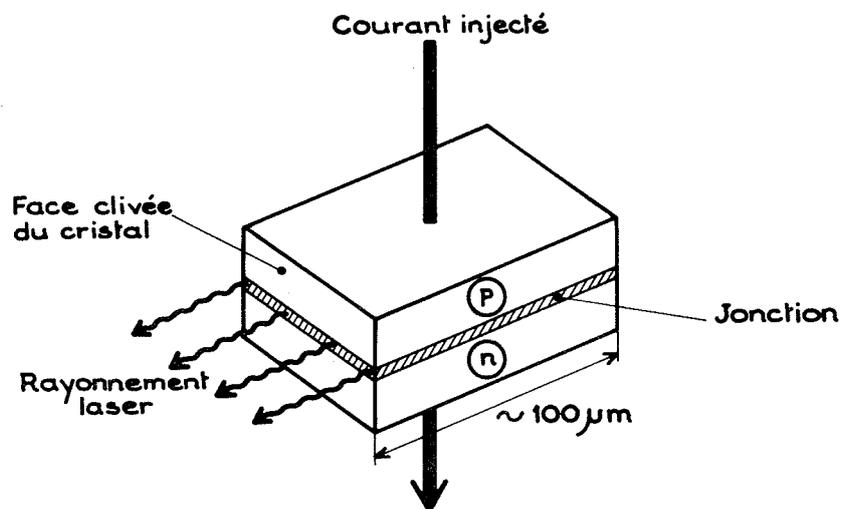


Fig. 3 - Représentation schématique d'un laser à GaAs .

La cavité optique mise à part, les techniques de fabrication des lasers à GaAs sont celles des jonctions p-n ordinaires, dont ils possèdent les caractéristiques électriques. Dans le procédé de diffusion, le plus classique, on diffuse un accepteur tel que le zinc ($\sim 10^{20}$ atomes/cm³) dans un matériau de type n qui a été dopé par un donneur tel que le tellure, le silicium ou le germanium ($\sim 10^{18}$ atomes/cm³). Dans le procédé plus récent d'épithaxie en phase liquide, on fait croître une couche de type p sur un matériau de type n (ou vice-versa) à partir d'une solution maintenue à haute température (environ 1000°C). La propriété de clivage du cristal de GaAs est utilisée pour former une cavité optique délimitée par deux faces planes parallèles. L'indice de réfraction de GaAs étant élevé ($n \approx 3,6$), le pouvoir réflecteur de ces faces est d'environ 32%. Dans certains cas, des couches réflectrices sont déposées sur les faces, ou même, le cristal (pourvu de couches anti-reflets) est placé dans une cavité optique externe [28].

L'épaisseur de la zone active peut être définie comme la distance que parcourent les électrons injectés dans la région p avant de se recombiner avec un trou. Son ordre de grandeur est de 1 μm . A cause de la variation de la constante diélectrique au voisinage de la zone active, la pénétration des modes électromagnétiques est limitée transversalement à une zone d'épaisseur $d \sim 4 \mu\text{m}$. Cet effet de combinaison des modes explique la forme de la distribution spatiale du rayonnement, analogue à la figure de diffraction d'une fente (Fig. 4). L'ouverture angulaire du lobe central

$$\theta \sim 2 \lambda/d \quad (2)$$

(λ : longueur d'onde) est de l'ordre de 30°.

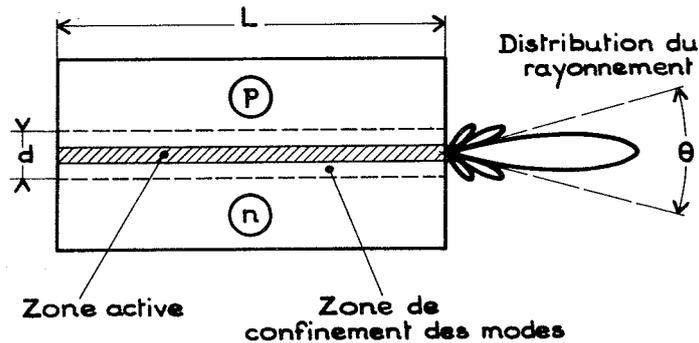


Fig. 4 - Coupe d'un laser à GaAs et distribution spatiale du rayonnement émis.

La longueur d'onde des modes longitudinaux de la cavité de longueur L est donnée par la relation classique

$$p\lambda = 2nL \quad (3)$$

où p est un nombre entier et $n(\lambda, T)$ l'indice du milieu. Connaissant le coefficient de dispersion $(\partial n / \partial \lambda)_T$, on déduit de (3) l'espacement des modes : environ 2 \AA pour $L = 300 \text{ \mu}$, à $T = 77 \text{ K}$ et $\lambda = 8500 \text{ \AA}$. Les modes d'oscillation du laser sont contenus dans le spectre d'émission spontanée du cristal, dont la largeur est de l'ordre de 100 \AA . L'oscillation laser se produit préférentiellement au voisinage du maximum de la bande d'émission incohérente.

3-2 LE SEUIL DE L'OSCILLATION LASER.

Comme dans les autres lasers, le seuil de l'oscillation est atteint lorsque le gain du milieu amplificateur compense exactement les pertes. Ces dernières proviennent ici essentiellement des processus d'absorption parasites (à l'intérieur d'une même bande ou par des porteurs libres) et de la diffusion par les impuretés contenues dans le cristal.

Expérimentalement, le courant injecté I_0 correspondant au seuil peut être déterminé de plusieurs façons. Si l'on mesure la puissance lumineuse émise par le laser pour des courants I de plus en plus grands traversant la jonction, le seuil se caractérise par une cassure brutale dans la fonction obtenue (Fig. 5-a). La forte pente de cette fonction au-dessus du seuil est à la base de la technique de modulation d'amplitude par modulation du courant utilisée dans les applications aux communications. Si l'on effectue une analyse spectrale du rayonnement, le seuil se traduit par un affinement spectaculaire du spectre (Fig. 5-b). Pour une valeur du courant juste inférieure au seuil I_0 , de petits pics se superposent au large fond d'émission spontanée, à l'emplacement des modes de la cavité : l'émission stimulée est déjà suffisante pour que le rayonnement puisse faire plusieurs trajets entre les faces du cristal. Une très faible augmentation du courant suffit alors pour produire une émission cohérente à la fréquence du mode le plus proche du maximum de l'émission incohérente. Si l'on continue à augmenter le courant, un nombre croissant de modes se mettent à osciller.

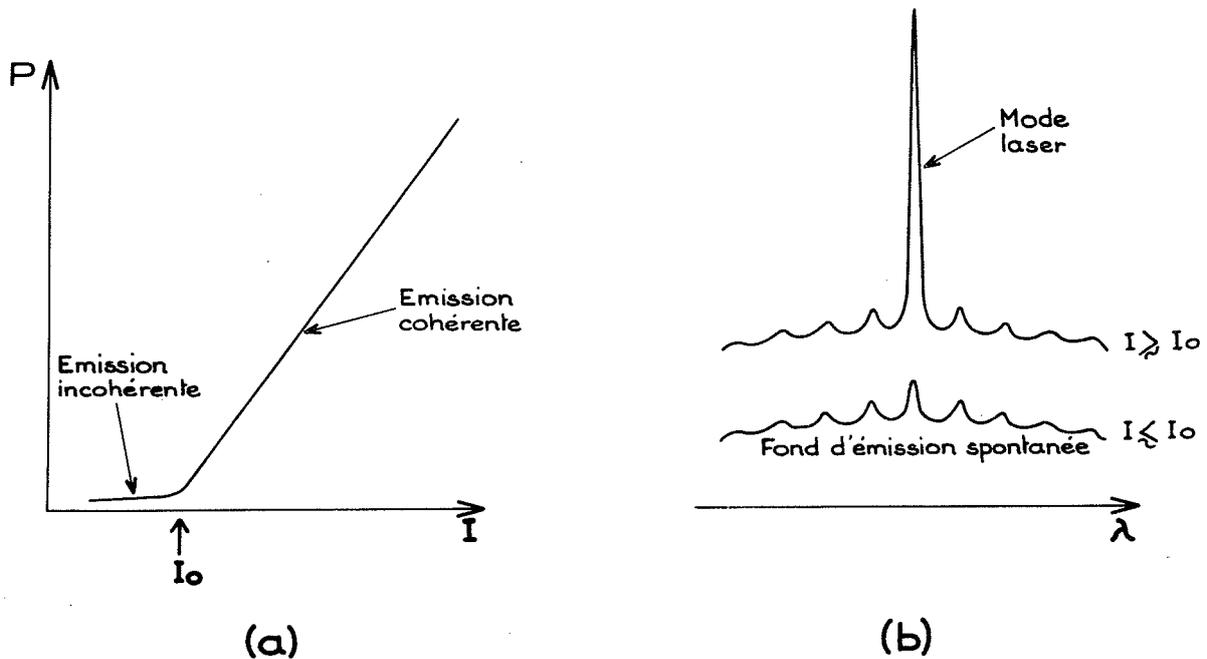


Fig. 5 - Détermination du courant-seuil I_0 .

- (a) Puissance lumineuse émise P en fonction du courant injecté I ;
 (b) Spectre du laser pour des valeurs de courant I voisines de I_0 .

Par suite du remplissage progressif des états non occupés de la bande de valence, le gain diminue lorsque la température s'élève. La valeur du courant seuil I_0 augmente très rapidement avec la température. Ce phénomène est à l'origine de la limitation du domaine de température où l'on peut obtenir une émission laser. Si l'on injecte des impulsions de courant au lieu d'un courant continu, l'échauffement du cristal est moindre. On peut ainsi faire émettre le laser à des températures bien plus élevées en impulsions qu'en régime continu.

Dans le cas de lasers à homojonction fabriqués par diffusion, I_0 croît assez lentement à basse température, puis comme T^3 au-dessus de $T \sim 100$ K [23]. Des valeurs typiques de la densité de courant correspondant au seuil sont 10^3 A/cm² à 77 K et 10^5 A/cm² à 300 K. Les lasers fabriqués par épitaxie possèdent des seuils plus bas à haute température. Des progrès supplémentaires ont été apportés par le développement des hétérojonctions simples et doubles. Ces techniques conduisent à un meilleur combinement dans la zone active à la fois du rayonnement et des électrons injectés. L'effet laser continu à température ambiante a pu être observé en 1970 grâce à des diodes à double hétérostructure du type GaAs - Al_xGa_{1-x}As, possédant des seuils aussi bas que 1600 A/cm² à 300 K [24].

3-3 INFLUENCE DE LA TEMPERATURE SUR LA LONGUEUR D'ONDE.

L'énergie moyenne du spectre d'émission spontanée dépend de la température approximativement comme le gap du semi-conducteur [23]. La pente d'une courbe typique de variation de la longueur d'onde avec la température augmente jusqu'à ce que la courbe devienne linéaire, au-dessus de $T \sim 100$ K. La longueur d'onde de l'émission spontanée se déplace d'environ 50 Å entre quelques K et 77 K, et d'environ 400 Å entre 77 K et 300 K. Ces chiffres donnent une idée du domaine sur lequel on peut, en théorie, accorder le laser (ce domaine est

souvent limité, surtout en régime continu, par la température maximale à laquelle le laser peut fonctionner).

La variation de la longueur d'onde des modes individuels du laser est de son côté liée au changement d'indice du milieu. Le coefficient $(\partial n / \partial T)_\lambda$ est tel que la longueur d'onde des modes augmente avec la température à raison d'environ $0,5 \text{ \AA}/\text{K}$ pour $T \approx 77 \text{ K}$ et $\lambda \approx 8500 \text{ \AA}$. Au même point, la longueur d'onde moyenne de l'émission spontanée croît environ 3 fois plus vite avec la température [23] ¹⁾.

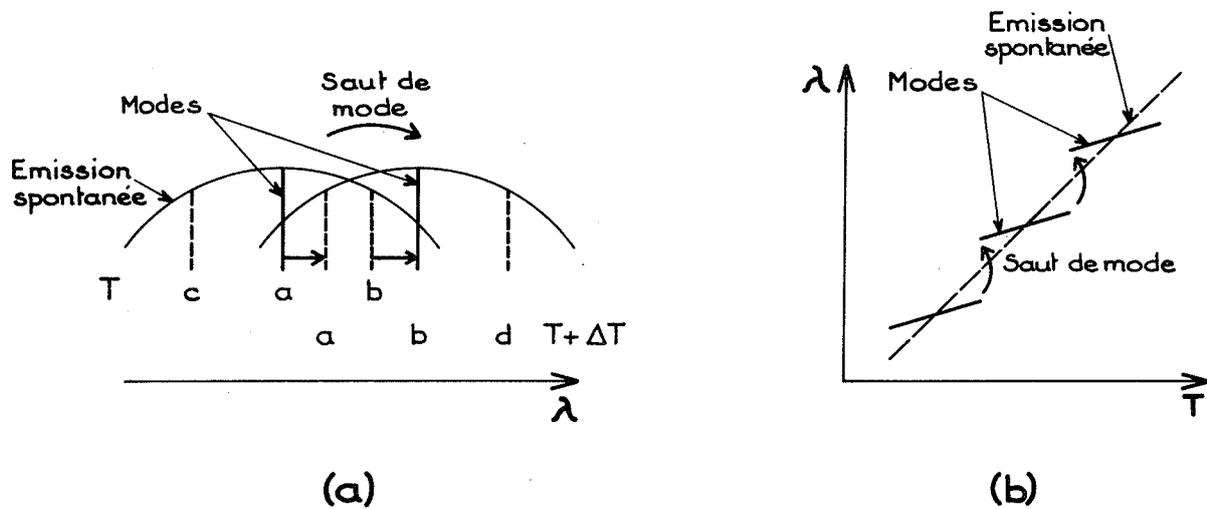


Fig. 6 - Accord de la longueur d'onde λ d'un laser monomode par changement de la température T .

- (a) Origine des "sauts de mode" ;
 (b) Variation discontinue de λ avec T .

¹⁾ La longueur d'onde des lasers à GaAs peut aussi être déplacée par variation de pression, avec des taux respectifs de l'ordre de $0,06 \text{ \AA}/\text{atm}$ et $0,02 \text{ \AA}/\text{atm}$ pour l'émission spontanée et les modes [25]. Le balayage par champ magnétique est également possible [26].

Cette différence de sensibilité de la longueur d'onde des modes et de leur enveloppe à un changement de température est à l'origine de "sauts de mode". Supposons que le laser oscille sur un mode longitudinal unique a : si l'on provoque un échauffement continu du cristal, ce mode aura tendance à s'éloigner du maximum de la courbe de gain, jusqu'à ce qu'il soit remplacé par le mode longitudinal voisin b , devenu plus favorisé (Fig. 6-a). L'accord thermique du laser s'effectue donc par une succession de déplacements continus d'un mode donné, séparés par des sauts discontinus (Fig. 6-b).

A l'intérieur d'un domaine limité, le moyen le plus commode de changer la température du laser consiste à changer le courant injecté. La dépendance de la fréquence des modes vis-à-vis du courant est utilisée pour le balayage fin dans les applications spectroscopiques. Elle permet également de moduler facilement la fréquence du laser. Aux fréquences de modulation inférieures à l'inverse du temps de recombinaison électrons-trous (~ 100 MHz), l'excursion de fréquence du mode suit la variation du courant en amplitude et en phase. Au delà, la création de bandes latérales à plusieurs dizaines de GHz a pu être observée [27].

4 - LE CRYOSTAT A TEMPERATURE VARIABLE.

4-1 MOTIVATIONS.

Bien que l'effet laser continu à température ambiante ait été obtenu avec des hétérojonctions doubles dès 1970 [24], de tels systèmes étaient peu répandus lorsque nous avons commencé à nous intéresser aux lasers à GaAs. Leur commercialisation n'a débuté qu'en 1976. Par ailleurs, les plus faibles largeurs spectrales (150 KHz) ont été observées à basse température [28]. En outre, la fréquence des modes est très sensible aux fluctuations de température, et l'est d'autant plus que la température est élevée. Technologiquement, la réalisation d'une régulation de température très précise est probablement plus facile dans un cryostat que dans une enceinte à température voisine de la température ambiante. Enfin, même si l'on dispose de lasers susceptibles d'osciller continûment à température ambiante, la possibilité d'opérer à des températures plus basses et ajustables élargit beaucoup l'éventail des longueurs d'onde.

Dans nos premières expériences, nous avons employé, suivant la plupart des auteurs, un simple vase Dewar contenant de l'azote liquide. Le cristal semi-conducteur était fixé sur une barre de cuivre plongeant dans le liquide. Le laser était excité par des impulsions de courant brèves. Pour obtenir un refroidissement plus efficace, facilitant le fonctionnement continu, nous avons ensuite immergé le laser lui-même dans l'azote liquide, puis dans l'hélium liquide. Dans ce cas, la formation de bulles réduit le contact thermique entre le liquide et le cristal. De plus, une dégradation du fonctionnement du laser se produit progressivement, qui semble due à la polarisation de petites particules attirées par la jonction. Par ailleurs, les systèmes à refroidissement direct ou indirect que nous venons de décrire possèdent une grande inertie thermique et n'offrent que des possibilités limitées pour

faire varier et pour réguler la température du laser. Ces expériences préliminaires nous ont conduits à développer un cryostat à température variable utilisant un courant gazeux comme agent réfrigérant.

4-2 CARACTERISTIQUES GENERALES DU CRYOSTAT.

Le cryostat a été étudié pour satisfaire à plusieurs critères importants pour le fonctionnement des lasers semi-conducteurs ¹⁾ :

- Variation de température sur un large domaine :

Le cryostat permet de faire varier continûment la température entre 5 K et la température ambiante, donc de couvrir tout le domaine spectral accessible à une diode donnée. Réciproquement, pour des expériences de spectroscopie atomique où la longueur d'onde de travail est imposée, nous avons pu, grâce à cette propriété, opérer un tri moins sévère des diodes dont nous disposions. Cet aspect pratique n'est pas négligeable dans la mesure où les diodes sont le plus souvent fabriquées en vue d'applications où la longueur d'onde exacte de fonctionnement n'est pas un paramètre critique.

- Action indépendante sur la température du gaz réfrigérant et sur le courant électrique injecté dans la jonction :
Comme nous le montrerons, cela permet de sélectionner le régime monomode du laser à une longueur d'onde donnée.

- Stabilisation précise de la température du laser :

Ce facteur est crucial compte-tenu de la forte sensibilité de la fréquence des modes à la température. Nous verrons que les fluctuations de température du laser sont de l'ordre de 10^{-3} K, ce qui limite les fluctuations de fréquence à environ 30 MHz.

1) Pour la conception du cryostat, nous avons bénéficié de l'aide de O. Testard, ingénieur au Centre d'Etudes Nucléaires de Saclay.

4-3 DESCRIPTION DU CRYOSTAT.

L'ensemble du système cryogénique est schématisé sur la Fig. 7 . Le cryostat se présente sous la forme d'un tube de 130 cm de longueur dont le diamètre extérieur est de 2 cm, sauf au niveau du corps du cryostat où il atteint 4 cm. La canne du cryostat plonge dans un réservoir de 40 litres contenant de l'hélium liquide. Le système utilise la circulation d'un courant d'hélium gazeux qui prend naissance dans la vapeur surmontant le liquide. Le gaz est aspiré par une pompe à palettes

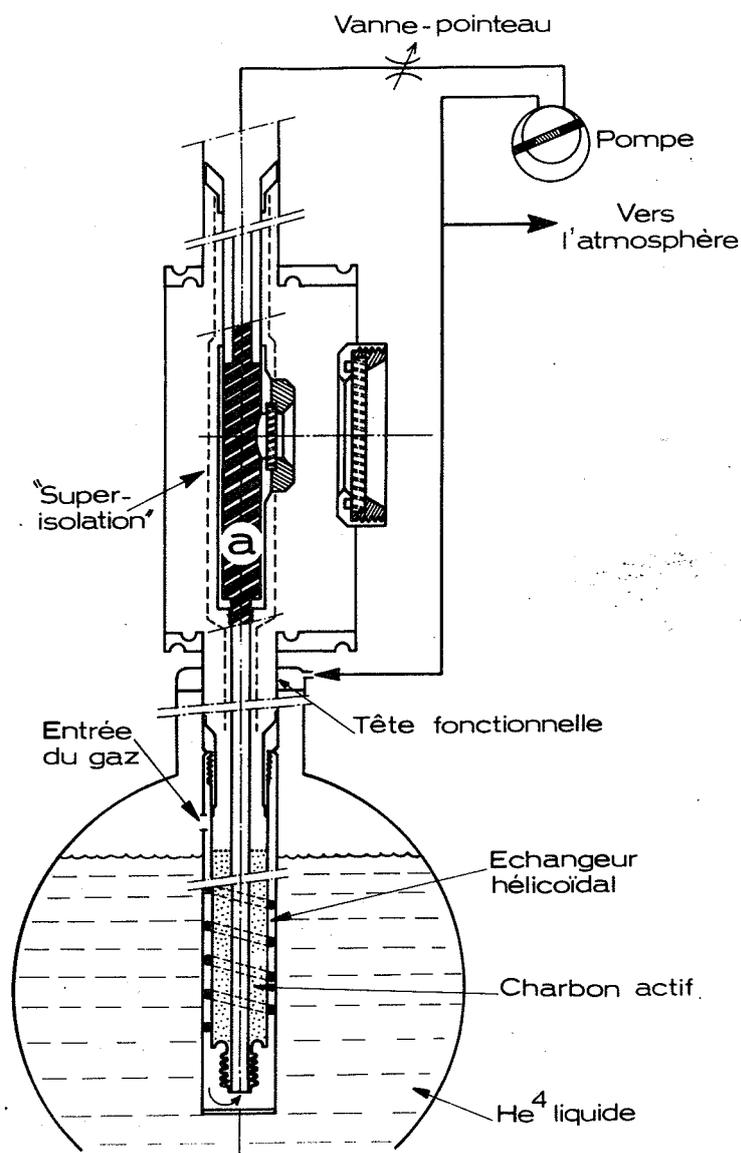


Fig. 7 - Schéma d'ensemble du cryostat. La partie hachurée (a) est représentée sur la Fig. 8 .

de $30 \text{ m}^3/\text{heure}$, avec un débit ajustable à l'aide d'une vanne-pointeau. L'orifice de refoulement de la pompe est connecté d'une part à la tête du container, afin de maintenir l'intérieur de celui-ci en légère surpression par rapport à la pression atmosphérique, d'autre part, directement à l'extérieur par l'intermédiaire d'un tube assurant une certaine perte de charge. L'hélium gazeux peut éventuellement être récupéré à ce niveau. Le cryostat est protégé thermiquement par une "super-isolation" constituée de 10 couches superposées de mylar aluminé (épaisseur $6 \mu\text{m}$) alternativement froissées et lisses. L'espace intermédiaire est placé sous vide. La qualité de ce vide est améliorée lorsque la canne est immergée, grâce à une réserve de charbon actif.

Le courant l'hélium gazeux est d'abord thermalisé à une température voisine de celle de He^4 liquide à l'intérieur d'un échangeur hélicoïdal situé dans la partie immergée. Il remonte ensuite vers le corps du cryostat dont la partie interne (longueur 60 mm, diamètre 11 mm), notée (a) sur la Fig. 7, est représentée en coupe sur la Fig. 8. Le gaz y parcourt en hélice une chaufferette de résistance 40Ω . Celle-ci est formée de 10 enroulements d'un fil isolé de manganin de diamètre 0,3 mm, séparés par 9 feuilles cylindriques de cuivre d'épaisseur 0,1 mm (voir l'agrandissement (b) de la Fig. 8). Puis, l'hélium gazeux irrigue un support de cuivre percé d'une multitude de petits canaux verticaux, qui est maintenu en contact thermique étroit avec la monture du laser.

Nous avons d'abord employé des lasers à GaAs commerciaux fabriqués par RCA et Laser Diode. La monture de ces diodes était fixée sur le support de cuivre. Mais nous avons le plus souvent travaillé avec des lasers IBM. Ceux-ci sont maintenus par pression entre deux fines lames de cuivre séparées par un isolant (Fig. 9). Afin de favoriser les échanges thermiques, le cristal et sa monture sont recouverts d'une mince pellicule d'indium et leur contact est réalisé par soudure

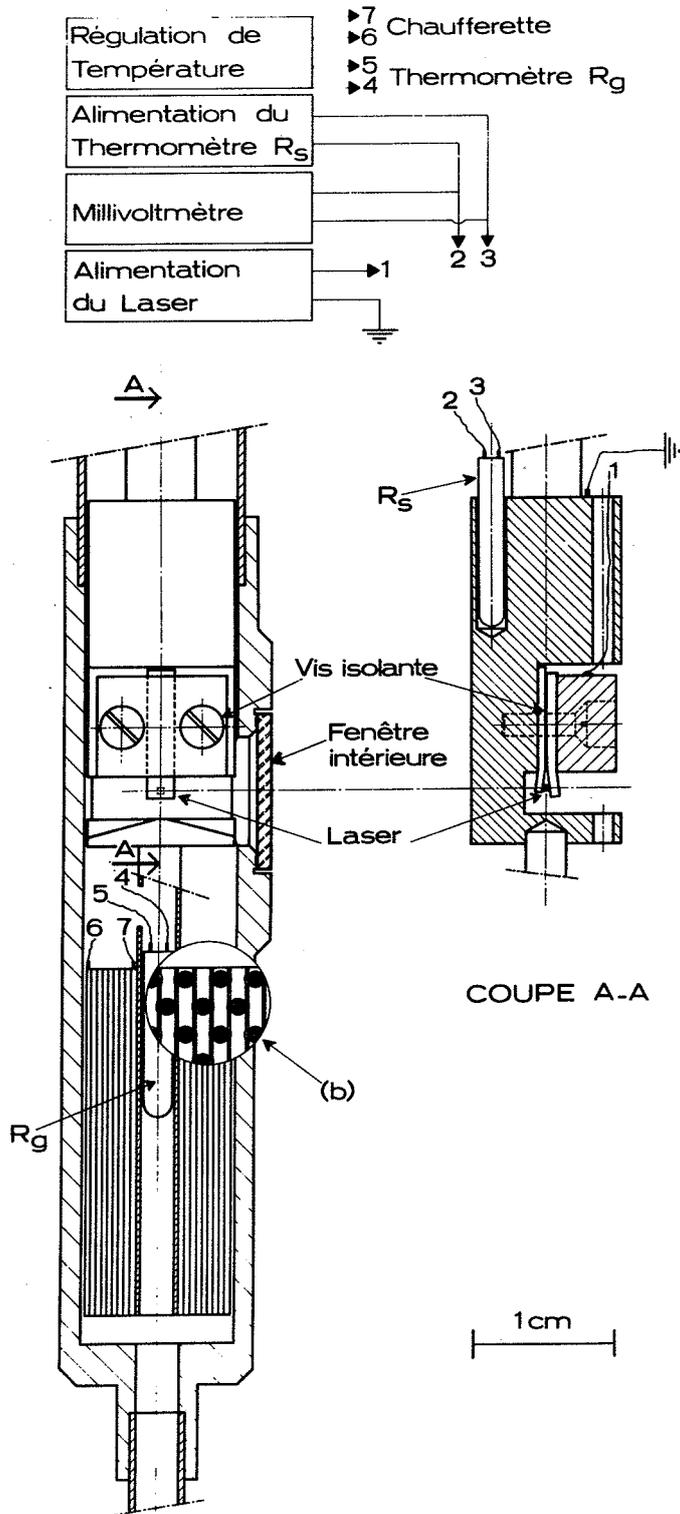


Fig. 8 - Schéma en coupe du corps du cryostat. L'agrandissement (b) décrit la structure en hélice de la chaufferette.

à froid [29]. Pour adapter cette monture à notre système, nous l'avons serrée entre deux blocs de cuivre refroidis dans la masse, isolés électriquement entre eux (voir la coupe A-A sur la Fig. 8).

Dans tous les cas, la monture du laser est fixée de façon à ce que le plan de la jonction soit horizontal. L'une des faces clivées est placée face aux deux fenêtres de pyrex qui séparent le cristal de l'extérieur (Fig. 7). Ces fenêtres délimitent à partir de laser une ouverture angulaire supérieure à 30° et transmettent ainsi la majeure partie du rayonnement.

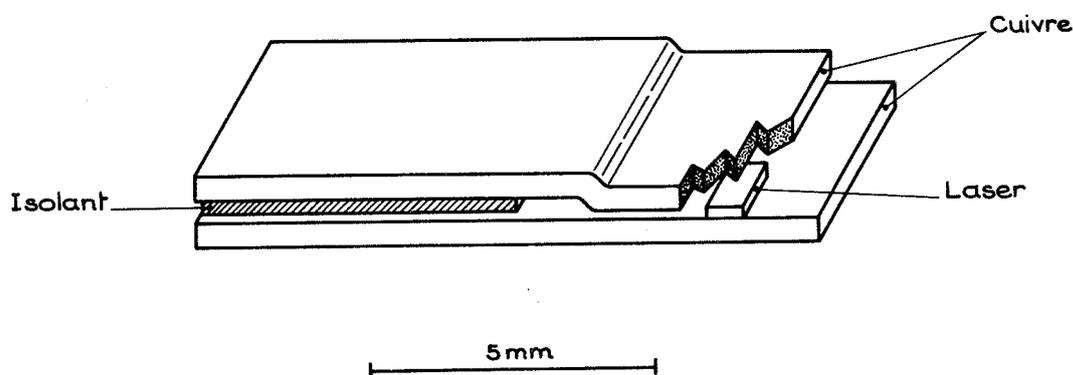


Fig. 9 - Monture du laser à GaAs .

4-4 FONCTIONNEMENT DU CRYOSTAT.

La température T_g du courant d'hélium gazeux au niveau de la chaufferette et la température T_s du support de cuivre du laser sont données par des thermomètres constitués par des résistances de platine R_g et R_s (Fig. 8). La valeur de ces résistances augmente quasi-linéairement entre 50 K et 300 K à raison de $0,4 \Omega/K$ (elle est d'environ 20Ω à 77 K). Nous avons utilisé des résistances de carbone Allen-Bradley dans les expériences à température inférieure à 30 K.

On agit sur la température T_g par l'intermédiaire du courant de la chaufferette, qui est en fait fourni par un système de régulation de température (ATNE). Ce système permet d'imposer la valeur de la résistance R_g en la comparant dans un pont à une résistance de référence, ajustable par pas de $0,1 \Omega$. Une détection synchrone engendre un signal d'erreur, s'annulant à l'équilibre du pont, qui est appliqué après amplification convenable à la chaufferette.

A chaque réglage de T_g correspond une valeur déterminée de T_s , pour un débit d'hélium donné. Ce débit est ajusté à l'aide de la vanne-pointeau. Même lorsque la puissance dissipée dans le laser est supérieure à 1 W , il peut être choisi de façon à ce que T_s reste voisine de T_g . La valeur de T_s est affichée par un millivoltmètre digital, qui indique à $10 \mu\text{V}$ près la tension aux bornes de la résistance R_s parcourue par un courant stabilité de 1 mA . A la résolution de $2 \times 10^{-2} \text{ K}$ autorisée par cette détermination, la température T_s apparaît parfaitement constante.

La température T_l du laser dépend aussi du courant qui y est injecté, délivré par une alimentation régulée (North-Hills TC - 602 CR). Cet appareil fournit avec une stabilité de quelques parties pour 10^6 un courant ajustable entre 0 et 2 A avec une résolution de $1 \mu\text{A}$.

Le cryostat permet, grâce à ses faibles dimensions, d'atteindre la température la plus basse en un quart d'heure environ. Durant les expériences, la puissance électrique dissipée est typiquement de 10 W dans la chaufferette et 1 W dans le laser. La consommation en hélium liquide est alors d'environ 1 l/heure .

5 - LE LASER A GaAs CONTINU MONOMODE.

Par souci de clarté, nous ne décrivons ici que les résultats obtenus avec les lasers développés par J. C. Marinace aux laboratoires d'IBM (Watson Research Center, Yorktown Heights, New York). En effet, c'est avec ces lasers, dont le domaine spectral était en général mieux centré sur la raie D_2 (8521 Å), que nous avons effectué la plupart de nos expériences sur le césium. Il s'agit de diodes à homojonction fabriquées par diffusion de zinc dans un cristal de GaAs dopé à l'étain [29]. Ce cristal est clivé pour former des lasers de dimensions approximatives : longueur 300 µm, largeur et épaisseur 100 µm. Nous avons déjà décrit la façon dont les lasers sont montés (Fig. 9).

5-1 PRINCIPE DE L'UTILISATION DU LASER.

La longueur d'onde moyenne d'émission λ et la fréquence des modes individuels ν dépendent uniquement de la température T_ℓ du laser (§.3-3) :

$$\lambda = f(T_\ell) \quad , \quad (4)$$

$$\nu = g(T_\ell) \quad . \quad (5)$$

Le nombre de modes dépend essentiellement de la valeur du courant injecté I par rapport au seuil I_0 à une température donnée (§.3-2). La condition de l'oscillation monomode peut s'écrire :

$$I \gg I_0(T_\ell) \quad . \quad (6)$$

Par ailleurs, nous savons (§.4-4) que la température T_ℓ du laser est fixée par deux paramètres sur lesquels on peut agir indépendamment, la température T_g du courant gazeux extérieur et le courant injecté I :

$$T_\ell = h(T_g, I) \quad . \quad (7)$$

Les mécanismes de l'utilisation du laser découlent entièrement des relations (4), (5), (7) et de la condition (6). On déduit de (4) et (7) que λ est fonction de T_g : l'ajustement de la longueur d'onde est effectuée par variation de la température de l'hélium gazeux. Pour obtenir une oscillation monomode à la longueur d'onde ainsi déterminée, il faut en général diminuer I (6) tout en maintenant T_l inchangée (4). D'après (7), toute diminution $-\Delta I$ du courant électrique doit donc être compensée par une augmentation ΔT_g de la température du gaz telle que :

$$\frac{\Delta T_g}{\Delta I} = - \frac{\partial T_l / \partial T_g}{\partial T_l / \partial I} \quad (8)$$

Enfin, (5) et (7) indiquent que ν dépend de I : le réglage fin de la fréquence du laser monomode est réalisé par variation de courant de la diode.

5-2 DISPOSITIF EXPERIMENTAL.

Dans toutes nos expériences, un dispositif du type de celui représenté schématiquement sur la Fig. 10 entoure le laser à GaAs. L'émission du laser est recueillie par une lentille de courte distance focale (4 cm) et de position ajustable, déterminant un faisceau approximativement parallèle. Plusieurs faisceaux de faible intensité sont prélevés sur le faisceau principal et dirigés vers divers appareils d'analyse spectrale.

Le monochromateur à réseau, de type Ebert-Fastie, possède une résolution d'environ $1 \overset{\circ}{\text{Å}}$. Il est utilisé en spectromètre pour le réglage grossier de la longueur d'onde, en spectrographe (Fig. 12) ou en spectroscopie pour la vérification du fonctionnement monomode. Dans l'utilisation en spectroscopie, la fente de sortie est supprimée et les modes du laser sont visualisés à l'aide d'un tube convertisseur d'images infra-rouges.

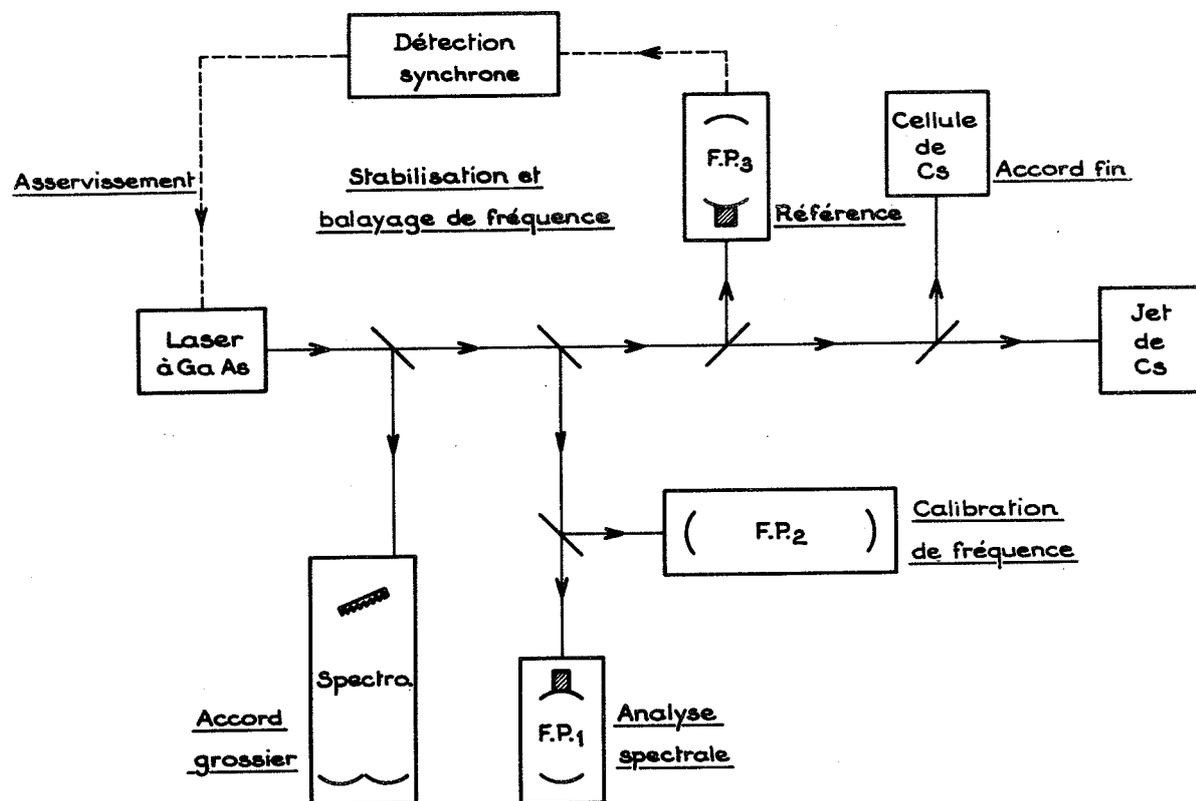


Fig. 10 - Dispositif expérimental accompagnant le laser à GaAs .

L'interféromètre FP_1 est un Fabry-Perot sphérique confocal de longueur 8 cm (intervalle entre ordres 940 MHz) dont les miroirs peuvent réfléchir la lumière à la fois à 8521 \AA et 6328 \AA ¹⁾. L'interféromètre peut ainsi être réglé à l'aide de la lumière visible d'un laser hélium-néon. Suivant les cas, il est utilisé en analyseur de modes pour vérifier la stabilité en fréquence du laser (Fig. 18) ou en étalon de longueur fixe pour mesurer les grands déplacements de fréquence

¹⁾ Ces miroirs ont été traités par E. Pelletier (Université Saint-Jérôme, Marseille).

(Fig. 16, 17, 20). L'étalonnage des balayages fins du laser est effectuée par comptage des franges (distantes de 75 MHz) d'un étalon confocal FP_2 de 1 mètre de longueur, utilisé en transmission.

Comme nous le verrons par la suite, l'observation de la lumière de fluorescence issue d'une cellule à vapeur de césium a été utilisée dans diverses expériences. Elle a aussi servi à l'accord fin de la longueur d'onde du laser en vue de l'excitation du jet de césium. Nous reviendrons également sur les systèmes d'asservissement du laser (§.5-4-2). Suivant les expériences, le discriminant de fréquence est obtenu à partir d'un pic de transmission d'un interféromètre FP_3 ou d'une raie de fluorescence du jet atomique de césium.

5-3 ACCORD ET OSCILLATION MONOMODE.

Nous avons représenté sur la Fig. 11 la courbe de variation de la longueur d'onde, en régime continu, pour un laser typique parmi les lasers IBM dont nous disposons. Pour diverses températures T_g du courant d'hélium gazeux, le courant continu injecté était ajusté à une valeur légèrement supérieure au seuil et la longueur d'onde λ du laser et la température T_s du support étaient relevées. Il faut remarquer qu'à cause de la puissance électrique dissipée dans le cristal, la température T_s est, en fait, inférieure à la température vraie T_l du laser (la différence est moindre lorsqu'on injecte des impulsions de courant). On voit que le domaine d'accord du laser continu est voisin de 100 \AA . La Fig. 11 indique également la variation simultanée du courant seuil I_0 . Les conditions de fonctionnement du laser sont parfois inconfortables dans la partie supérieure du domaine de température, où les seuils deviennent très élevés : l'oscillation laser est alors moins stable, la contribution du fond d'émission spontanée à la puissance lumineuse émise peut ne plus être négligeable. Suivant le laser IBM employé, le point $\lambda_0 = 8521 \text{ \AA}$ est associé sur les courbes du type

Fig. 11 à des températures $T_s(\lambda_0)$ variant entre 65 K et 90 K et des courants $I_0(\lambda_0)$ variant entre 0,5 A et 1,2 A ¹⁾.

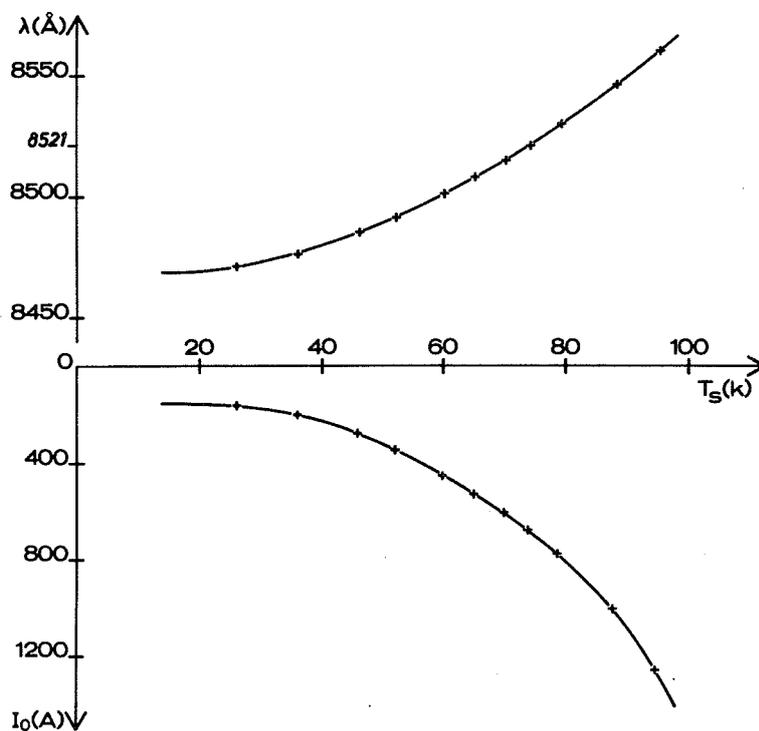


Fig. 11 - Courbes de variation de la longueur d'onde λ émise en régime continu monomode et du courant-seuil I_0 en fonction de la température T_s du support du laser.

L'accord à la raie D_2 du césium est effectué de la façon suivante. La longueur d'onde est d'abord ajustée à 8521 \AA à la résolution du spectromètre près. Si le laser oscille à ce moment sur plusieurs modes, le régime monomode est établi. Le mode unique est finalement amené à résonance exacte par observation de la fluorescence d'une vapeur

¹⁾ Ces données dépendent beaucoup de la fabrication des lasers. Pour ceux de Laser Diode, nous avons $T_s(\lambda_0) \sim 5$ à 20 K et $I_0(\lambda_0) \sim 100$ à 200 mA .

de césium. Pour cela, le courant injecté est changé par sauts discontinus d'amplitude de plus en plus faible afin d'encadrer la fréquence de résonance de façon de plus en plus précise.

Nous montrons sur la Fig. 12 l'enregistrement d'un spectre monomode centré sur la longueur d'onde du césium, effectué à l'aide du spectrographe à réseau. Aux températures permettant l'excitation du césium et en régime monomode, la puissance lumineuse recueillie par la lentille placée devant le laser est de l'ordre du milliwatt.

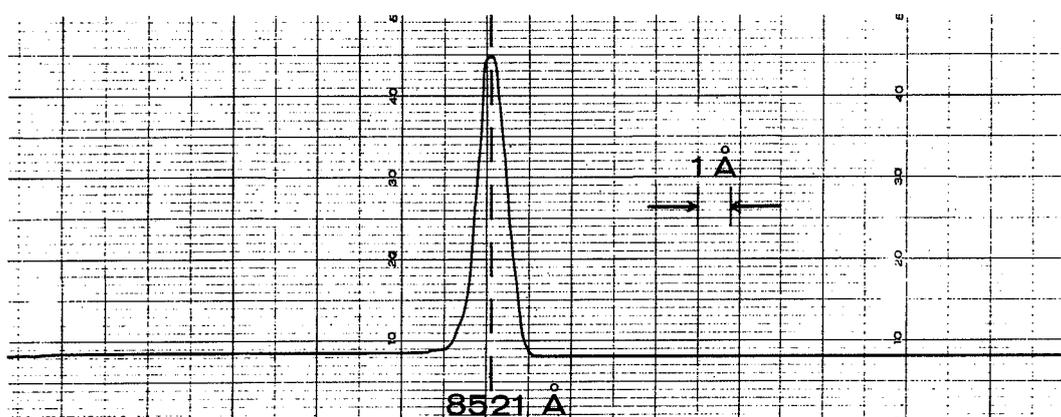


Fig. 12 - Spectre monomode centré sur la longueur d'onde de la raie D_2 du césium. La largeur de la raie est d'origine instrumentale.

Dans le cas du laser à GaAs, l'oscillation de plusieurs modes longitudinaux ne serait pas aussi gênante que dans d'autres types de lasers du point de vue de leur interaction simultanée avec le milieu atomique étudié. En effet, la distance entre deux modes successifs est en général grande devant une largeur Doppler ou une structure hyperfine. Le régime monomode est cependant le mieux adapté aux applications spectroscopiques. Grâce à l'absence de compétition entre modes voisins, il permet une meilleure stabilité en fréquence et en intensité, ainsi qu'une plage de balayage fin plus étendue.

5-4 STABILITE ET BALAYAGE DE LA FREQUENCE.5-4-1 Laser libre.a - Déplacement point par point.

Les premiers tests des performances du système laser-cryostat ont été effectués à partir de la mise en résonance avec la raie d'absorption D_2 ($6^2S_{1/2} \longleftrightarrow 6^2P_{3/2}$) d'une vapeur de césium. A cause de l'effet Doppler, seule la structure hyperfine de l'état fondamental est résolue. On observe donc 2 raies séparées d'environ 9,2 GHz. Le passage de la composante hyperfine issue du niveau $F=3$ de l'état fondamental à la composante issue du niveau $F=4$ est obtenue par une augmentation de courant de 10 à 20 mA, suivant les diodes.

Nous avons reporté sur la Fig. 13 des résultats obtenus au cours de l'étude expérimentale du "light-shift" de la transition hyperfine de l'état fondamental (Chap. IV). La fréquence du laser devait être

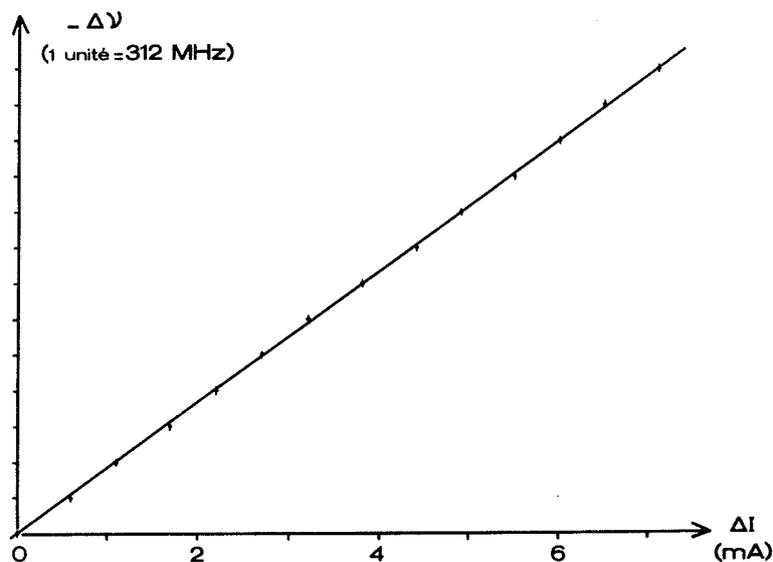


Fig. 13 - Diminution $\Delta\nu$ de la fréquence du laser à GaAs monomode en fonction de l'augmentation ΔI du courant injecté.

déplacée point par point de part et d'autre de chaque transition hyperfine. Nous avons relevé les variations de courant nécessaires pour produire un déplacement de fréquence de 5 GHz par pas de 312 MHz (correspondant au tiers de l'intervalle entre-ordres de l'interféromètre FP_1). On voit que la fréquence du mode décroît linéairement lorsqu'on augmente le courant injecté, à raison de 0,6 GHz/mA dans ce cas particulier.

L'ajustement précis de la fréquence du laser au sommet de l'une des transitions hyperfines exige une résolution en courant d'au moins $10 \mu A$. La Fig. 14 reproduit un enregistrement du signal de fluorescence effectué pendant une période de plusieurs minutes à compter d'un tel ajustement. L'intensité du faisceau issu du laser à GaAs était suffisamment atténuée pour qu'on obtienne une réponse linéaire des atomes. On peut estimer à partir de cet enregistrement qu'en dehors de quelques accidents, les variations d'intensité et de fréquence du laser monomode oscillant librement sont respectivement de l'ordre de 1% (en valeur relative) et ≈ 30 MHz. On déduit de ces variations de

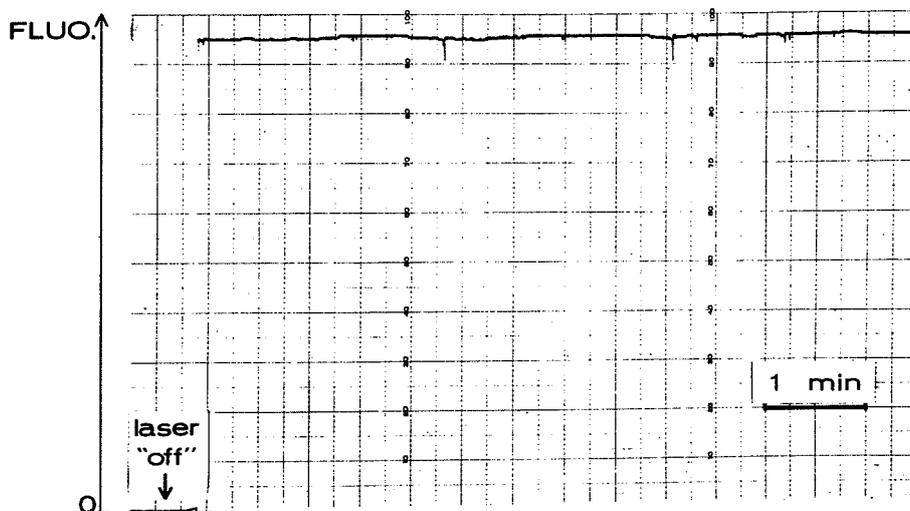


Fig. 14 - Test de stabilité du laser à GaAs monomode non asservi. Enregistrement en fonction du temps de la fluorescence produite par l'excitation de la composante hyperfine issue de $F=4$ de la raie D_2 d'une vapeur de césium. Constante de temps : 0,3 s.

fréquence que les variations de la température de la jonction et du courant injecté ne dépassent pas respectivement $\pm 0,001$ K et ± 30 μ A ¹⁾. Nous avons constaté qu'en l'absence de toute correction, la fréquence du laser se maintenait à l'intérieur du profil d'une raie hyperfine de la vapeur de césium pendant plusieurs heures ²⁾. Nous avons également accordé le laser à la raie d'absorption $4p^5s'[1/2]_1 \longleftrightarrow 4p^5p'[3/2]_1$ (8511 Å) du krypton excité dans une décharge, et obtenu dans ce cas des résultats analogues.

b - Balayage continu.

Le déplacement de fréquence peut aussi être réalisé par variation continue du courant de la diode. L'injection d'une rampe de courant relativement rapide permet une visualisation commode des phénomènes sur l'écran d'un oscilloscope. Plus précisément, nous avons superposé de façon périodique une variation de courant triangulaire et symétrique au courant continu. Le choix du niveau continu et celui de l'amplitude de la rampe déterminent respectivement l'origine et l'étendue du balayage. La Fig. 15 décrit le montage expérimental utilisé pour obtenir l'oscillogramme de la Fig. 16-a. Dans le cas de la Fig. 16-b, l'interféromètre n'était pas placé derrière la cellule de vapeur de césium, mais sur un faisceau annexe.

1) Dans l'exemple de la réf. [17] où l'accord à la raie D_2 est réalisé par pression, il faudrait que les variations de pression ne dépassent pas 3×10^{-2} atm. autour d'une valeur de 160 atm. pour obtenir une stabilité de fréquence comparable.

2) Ces résultats nous ont permis d'effectuer un pompage hyperfin stable et efficace de la vapeur de césium [V]. En raison de l'impossibilité de réaliser un filtre isotopique comme dans le cas du rubidium [30, 31], les diverses méthodes proposées pour effectuer le pompage hyperfin du césium avec des sources conventionnelles sont peu efficaces.

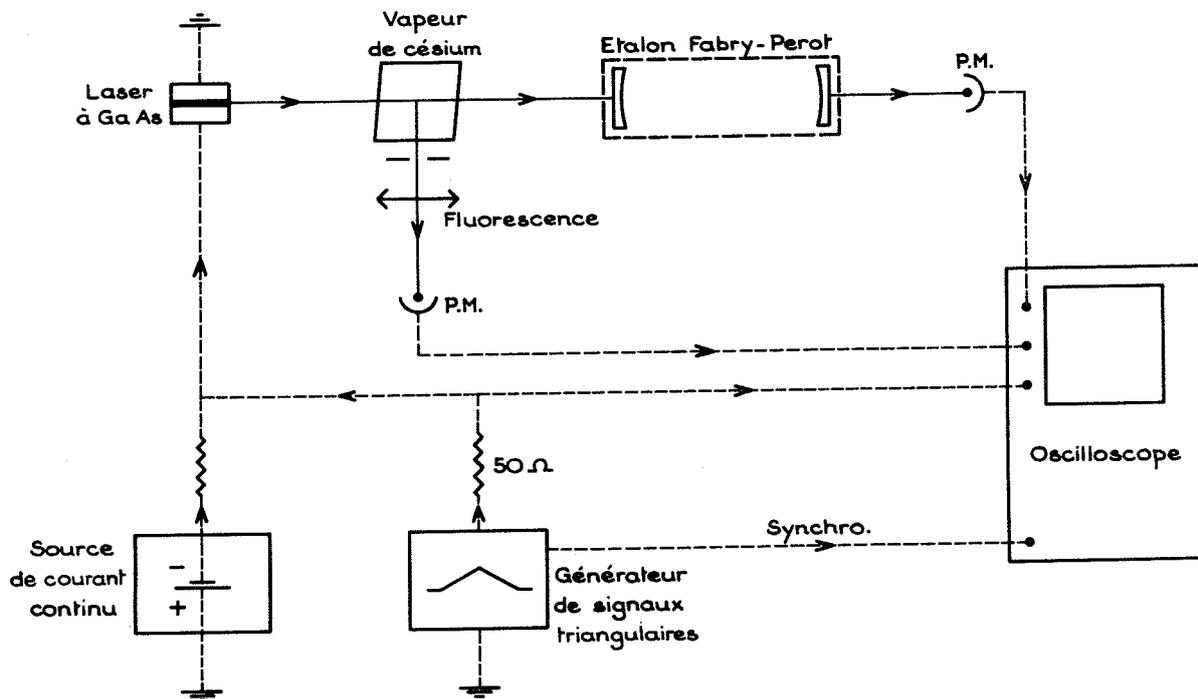


Fig. 15 - Montage expérimental utilisé pour le balayage continu de fréquence par injection d'une rampe de courant et l'observation simultanée des raies de fluorescence d'une vapeur de césium.

La Fig. 16 montre les trois signaux détectés de façon synchrone par l'oscilloscope. Considérons d'abord la Fig. 16-a. La trace (1) figure la rampe de courant (durée 7 ms, période 70 ms, amplitude 20 mA), appliquée dans ce cas avec une polarité opposée à celle du courant continu. La température de la jonction est donc décroissante sur la partie gauche de la photographie et croissante sur la partie droite. Le signal de fluorescence est représenté sur la trace (2). Les pics de fluorescence apparaissent dans l'ordre $F=4$, $F=3$ (fréquence croissante) puis dans l'ordre inverse. Le rapport attendu $7/9$ des intensités

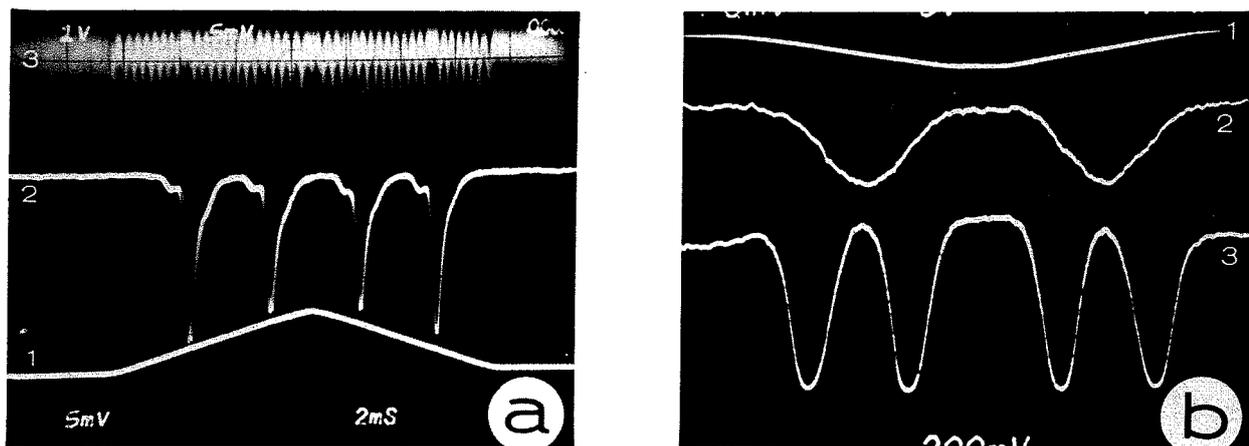


Fig. 16 - Balayage de fréquence du laser à GaAs au voisinage de la raie D_2 du césium : (a) Balayage de 20 GHz à travers la structure hyperfine ; (b) Balayage de plus faible étendue à travers le profil d'une des deux composantes hyperfines (voir le texte).

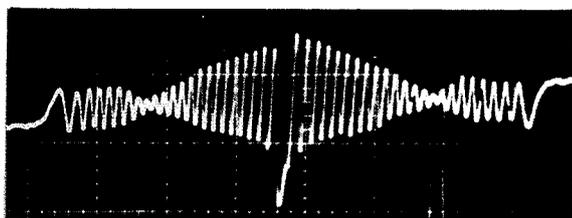


Fig. 17 - Mise en évidence d'un saut de mode au cours d'un balayage de fréquence. Franges de l'étalon d'intervalle entre ordres 940MHz.

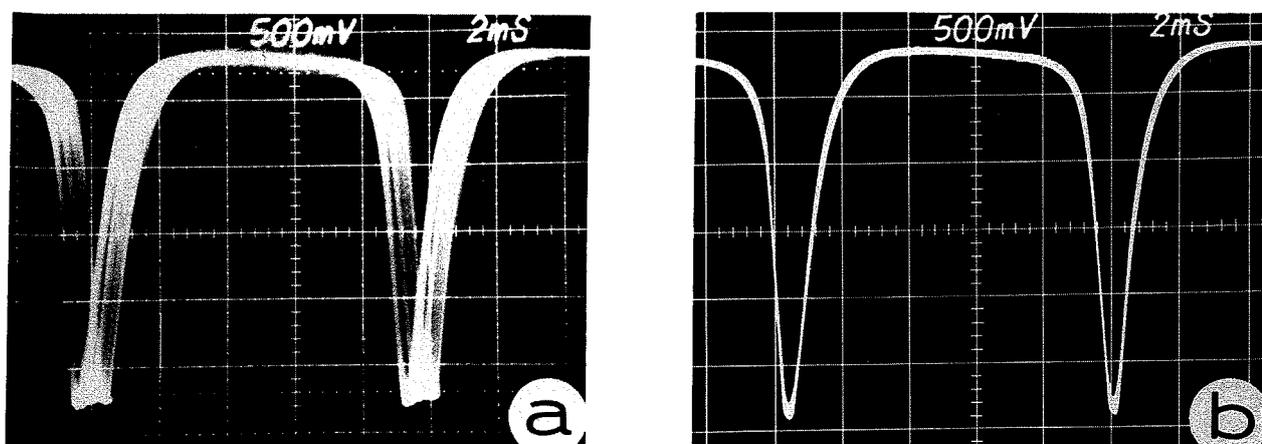


Fig. 18 - Analyse de l'émission monomode du laser par un interféromètre de Fabry-Perot d'intervalle entre ordres 940 MHz. La largeur de raie est limitée par l'interféromètre. (a) Laser non stabilisé ; (b) Laser stabilisé par rapport à une cavité externe. Durée d'exposition : 1 min. 3000 traces superposées.



est observé ¹⁾. La trace (3) visualise le balayage de fréquence d'environ 20 GHz par le défilement des pics de transmission de l'étalon FP₁, les raies du césium apparaissant ici en absorption. On vérifie que leur distance est d'environ 10 intervalles entre-ordres.

L'équidistance des pics de l'interféromètre traduit la dépendance linéaire de la fréquence du mode vis-à-vis du temps (3 GHz/ms dans cet exemple) et donc du courant (1 GHz/mA). Leur hauteur constante indique que l'intensité du mode ne subit pas de variations importantes. On remarque également que la variation de fréquence commence et s'arrête en même temps que la variation du courant. Ces diverses caractéristiques montrent que, par suite du long temps de montée des variations de courant triangulaires et de leur faible taux de répétition (par rapport aux constantes de temps thermiques), l'échauffement du cristal se produit à travers une succession d'états d'équilibre. Cela n'est pas le cas si l'on superpose au courant continu des impulsions de courant de courte durée ($\sim \mu\text{s}$) avec un fort taux de répétition [11, 12]. Le fonctionnement du laser se distingue encore plus de celui que nous avons décrit lorsqu'on y injecte uniquement des impulsions de courant de grande amplitude [13, 14].

Dans l'exemple de la Fig. 16-b, la polarité de la rampe est la même que celle du courant continu et son amplitude est limitée à environ 1 mA. On observe ainsi une seule composante hyperfine, mais avec un plus fort "grossissement". On voit que la largeur de raie est voisine de 800 MHz.

¹⁾ La cellule de vapeur de césium utilisée ne contenait pas de gaz tampon. L'intervalle de temps séparant les 2 résonances successives était bien supérieur au temps de relaxation hyperfine de l'état fondamental. Une modification de leurs intensités relatives par pompage hyperfin [15] ne pouvait donc pas se produire.

La Fig. 17 illustre un balayage de fréquence effectué dans des conditions analogues à celui de la Fig. 16-a , mais qui est interrompu par un saut de mode. Il nous était généralement possible de réaliser, avec le même mode, un balayage avec variation linéaire de fréquence et intensité constante sur des plages d'environ 30 GHz.

5-4-2 Laser asservi.

A cause des constantes de temps thermiques, la régulation de température du cryostat ne permet d'éliminer que la dérive et les fluctuations lentes de la fréquence du laser. Par contre, le temps de réponse de la fréquence à une impulsion de courant est de l'ordre de la nanoseconde à basse température. La réalisation d'une boucle d'asservissement agissant directement sur le courant injecté constitue donc un moyen particulièrement simple et efficace pour corriger les fluctuations rapides de fréquence. L'effet d'une telle boucle apparaît nettement sur la Fig. 18 (il s'agit dans ce cas de la stabilisation par rapport à un interféromètre).

Dans la plupart des asservissements que nous avons réalisés (sur le laser à GaAs ou le laser à colorant), nous avons employé des appareils à détection synchrone commerciaux (PAR 124A, PAR HR8). Ces appareils classiques se composent de plusieurs étages successifs dont les principaux sont un amplificateur sélectif et un démodulateur-détecteur de phase. Ils contiennent un oscillateur pouvant fournir le signal de modulation. Dans tous les cas, nous avons stabilisé le laser au sommet de la raie de référence, dont la dérivée fournit le discriminant de fréquence.

a - Stabilisation sur une résonance de Fabry-Perot.

Pour enregistrer la structure hyperfine de la raie D_2 du césium (Chap. II), nous avons stabilisé le laser à GaAs sur la bande passante d'une cavité externe accordable. Le dispositif d'asservissement est schématisé sur la Fig. 19. Une partie de la lumière émise par le laser

monomode est envoyée à travers l'interféromètre de Fabry-Perot sphérique. FP_3 de longueur 12,5 cm (intervalle entre ordres 600 MHz), dont l'un des miroirs est porté par une céramique piézo-électrique. Le mode laser est amené en coïncidence avec l'une des résonances de transmission du Fabry-Perot dont la fréquence est modulée à 4 KHz avec une amplitude de 100 MHz. La modulation de la lumière transmise qui en résulte est analysée en phase dans l'amplificateur à détection synchrone. La boucle est fermée en appliquant le signal continu délivré par ce dernier au laser, à travers une résistance de 1 K Ω limitant le courant correctif entre -10 et +10 mA. Le déplacement continu de la fréquence du laser est alors obtenu en appliquant une rampe haute-tension à la céramique de l'interféromètre de référence FP_3 .

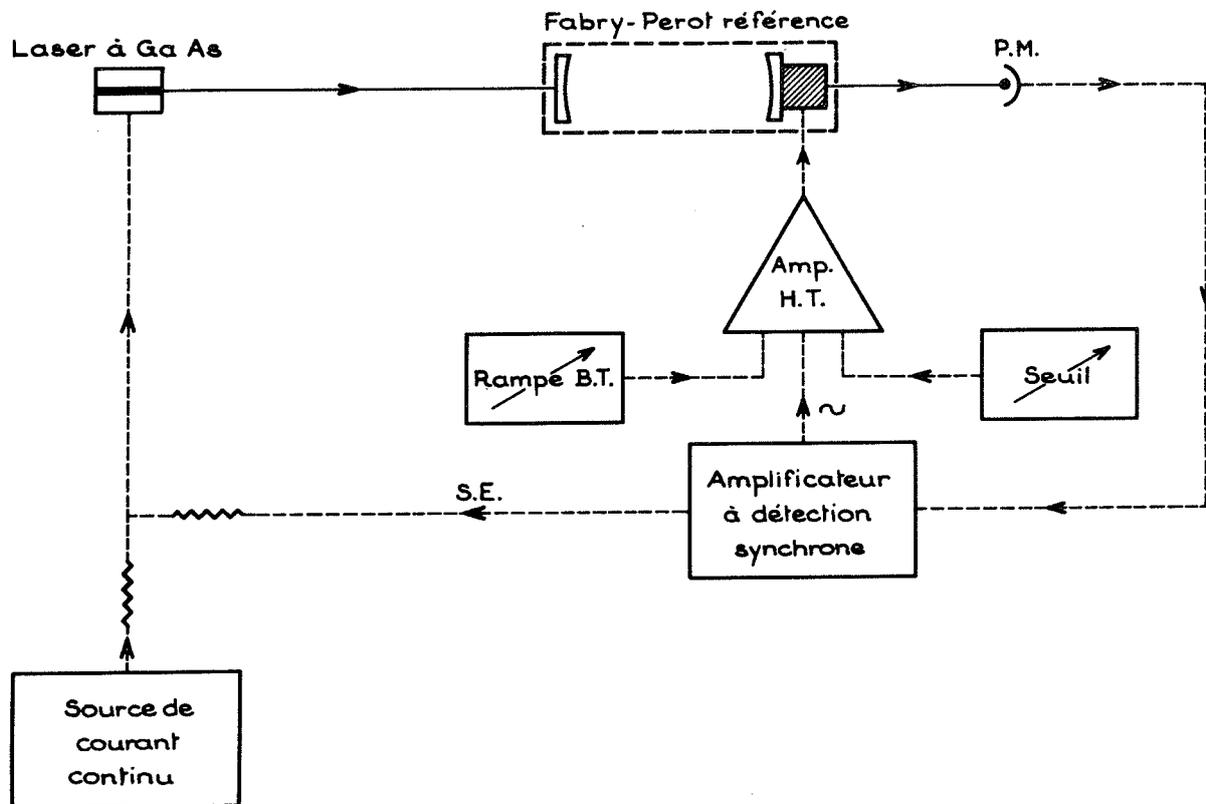


Fig. 19 - Montage utilisé pour la stabilisation de fréquence du laser à GaAs au sommet d'une résonance de Fabry-Perot.

La Fig. 20 illustre un exemple de balayage de fréquence du laser asservi, sur une plage de 5 GHz. L'un des deux enregistrements simultanés représente les franges successives de l'étalon FP_1 , l'autre le signal d'erreur appliqué au laser. La relation linéaire courant-fréquence est à nouveau vérifiée, cette fois en sens inverse (c'est la variation de fréquence qui est imposée, et le courant qui suit). La vitesse de balayage du laser a été choisie volontairement basse (environ 2,5 GHz/min), puisque nous savons que des balayages plus rapides peuvent être obtenus de façon satisfaisante par application directe d'une rampe de courant.

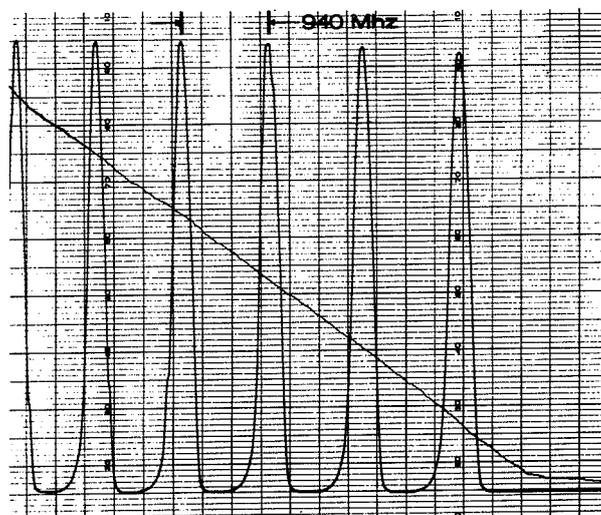


Fig. 20 - Balayage de fréquence du laser piloté par une cavité de Fabry-Perot externe, sur environ 5 GHz .
Enregistrement simultané des franges de transmission d'un étalon d'intervalle entre ordres 940 MHz et du signal d'erreur appliqué au laser.
Durée du balayage : 2 min.
Variation du courant injecté : 14 mA.

Si la tension continue appliquée à la céramique de FP_3 n'est pas changée, la fréquence du laser doit en théorie rester fixe (Fig. 18-b). Pour tester sa stabilité avec précision, nous avons employé une méthode originale qui nous a été suggérée par l'étude du "light-shift" de la

transition hyperfine de l'état fondamental du césium. Supposons que le laser à GaAs soit accordé à l'une des composantes hyperfines de la raie D_2 dans une vapeur de césium. Nous montrerons au Chapitre IV que l'écart de la fréquence de la transition $F=3, m_F=0 \longleftrightarrow F=4, m_F=0$ à sa valeur non perturbée ("light-shift") est proportionnel au déplacement de la fréquence du laser par rapport à la fréquence de la transition optique, avec un coefficient lui-même proportionnel à l'intensité du rayonnement laser. Pour une valeur donnée de cette intensité, on peut ainsi déduire les variations de la fréquence du laser des variations de la fréquence de la transition micro-onde, cette dernière étant mesurée par rapport à un étalon atomique ¹⁾. On bénéficie ainsi d'une référence absolue (dans notre cas, une horloge à rubidium) et de la résolution accessible aux équipements micro-onde.

Le montage expérimental est celui que nous avons utilisé pour la mesure du "light-shift" en fonction de la fréquence du laser (IV-A). Ici, la fréquence du laser avait été placée au sommet de la composante hyperfine de la raie D_2 issue de $F=4$, puis laissée libre. La fréquence du rayonnement micro-onde était verrouillée au centre de la transition $m_F=0 \longleftrightarrow m_F=0$ ²⁾ et mesurée toutes les 3 secondes. Les résultats de ces mesures sur une période de 1 minute, traduits en termes de variations de fréquence du laser, sont reportés sur la Fig. 21. On en déduit que la fréquence du laser était asservie

1) On peut aussi considérer le "light-shift" comme un discriminant de fréquence ne s'annulant (cette fois indépendamment de l'intensité du faisceau lumineux) que lorsque le laser est centré sur la transition optique. C'est le principe d'une méthode que nous avons proposée et testée [X] pour la stabilisation d'un laser par rapport à un étalon micro-onde.

2) On réalise ainsi une "horloge" à vapeur de césium pompée par un rayonnement monochromatique. Nous avons en fait mesuré les variations de fréquence de cette horloge créées par les instabilités de fréquence du rayonnement de pompage.

à la bande passante de la cavité de référence avec des fluctuations d'écart quadratique moyen voisin de 0,3 MHz. A ces fluctuations se superposait une dérive importante de la fréquence moyenne de 3,5 MHz/min, provenant de la dérive thermique de la cavité (Il était d'ailleurs possible de changer alternativement le signe de cette dérive en mettant en marche la régulation de température de la salle d'expériences ...).

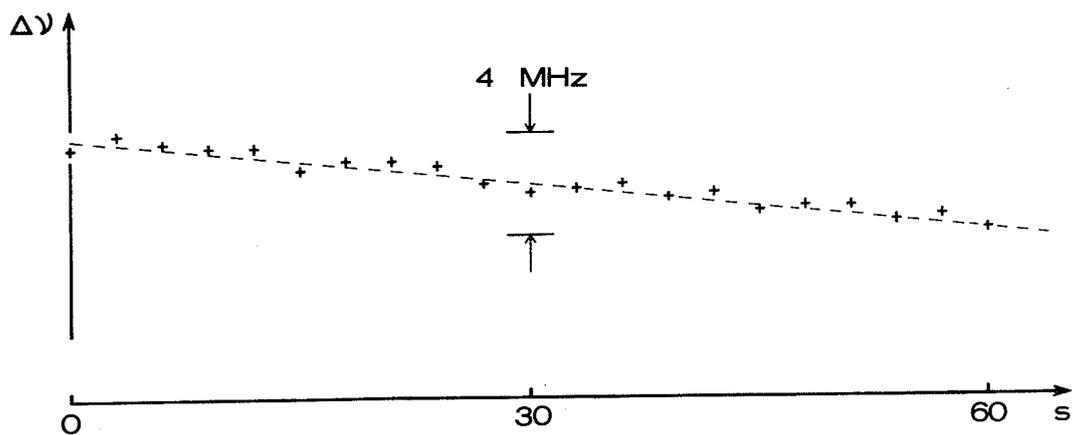


Fig. 21 - Variations $\Delta\nu$ de la fréquence du laser à GaAs stabilisé sur une résonance de Fabry-Perot, en fonction du temps.

b - Stabilisation sur une raie de fluorescence atomique.

Les écarts de structure hyperfine de l'état excité $6^2P_{3/2}$ du césium (~ 200 MHz) sont grands devant la largeur naturelle de cet état et devant les fluctuations de fréquence du laser à GaAs oscillant librement. La stabilisation sur l'une des raies hyperfines de fluorescence d'un jet de césium (Fig. II -) ne présente donc pas de difficultés. Le système d'asservissement est décrit par la Fig. 22. L'illumination du jet et l'observation de la fluorescence sont effectuées comme dans les expériences classiques de spectroscopie laser (Chap. II). Un courant sinusoïdal de fréquence 1 KHz et de faible

amplitude (correspondant à une excursion de fréquence du laser d'environ ± 50 MHz) et le signal d'erreur sont superposés au courant injecté dans le laser. La fréquence du laser stabilisé est donc modulée, alors qu'elle ne l'était pas avec le montage de la Fig. 19. La fréquence du laser a ainsi pu être verrouillée au sommet de différentes composantes hyperfines de la raie D_2 pendant de longues périodes ¹⁾.

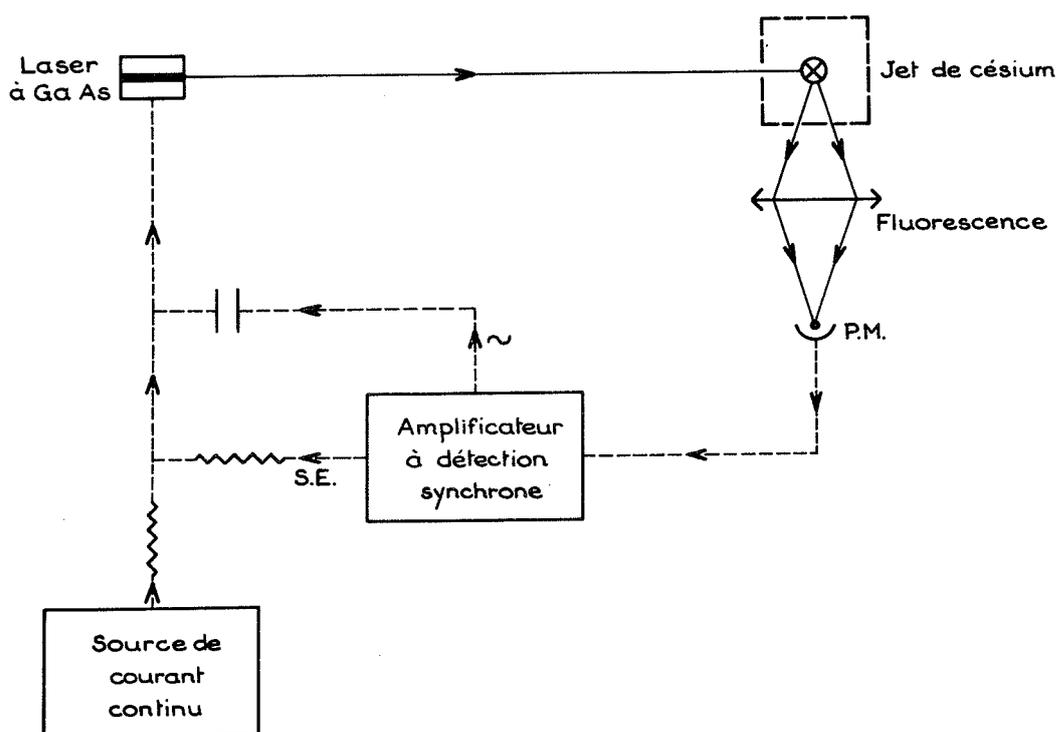


Fig. 22 - Montage utilisé pour la stabilisation de fréquence du laser à GaAs au sommet d'une raie hyperfine d'un jet atomique de césium.

¹⁾ Ce résultat est intéressant pour la réalisation éventuelle d'un étalon micro-onde à jet de césium à pompage optique [31, XIII]. Le laser devrait alors être stabilisé sur une composante hyperfine permettant un pompage hyperfin efficace de l'état fondamental.

Nous montrons sur la Fig. 23 un exemple d'enregistrement du signal d'erreur en boucle fermée. Le laser était stabilisé au sommet de la raie intense ${}^2S_{1/2}, F=4 \longleftrightarrow {}^2P_{3/2}, F'=5$. Le changement de hauteur du signal d'erreur a été produit volontairement en diminuant brusquement le courant continu injecté de 0,1 mA. Cela nous a permis de calibrer l'échelle en fréquence. On voit que la fréquence moyenne du laser se maintient à l'intérieur d'une bande dont la largeur ne dépasse pas 3 MHz. La raie de référence ne présentant pas de dérive, la stabilité à long terme de la fréquence absolue est évidemment meilleure que dans le cas de la stabilisation sur une résonance interférométrique. Par contre, le rapport signal-bruit étant moins favorable, la stabilité à court terme est moins bonne. L'arrondi de la variation du signal d'erreur, sur la Fig. 23, indique que, dans cet exemple, la constante de temps de la boucle devait être choisie assez élevée.

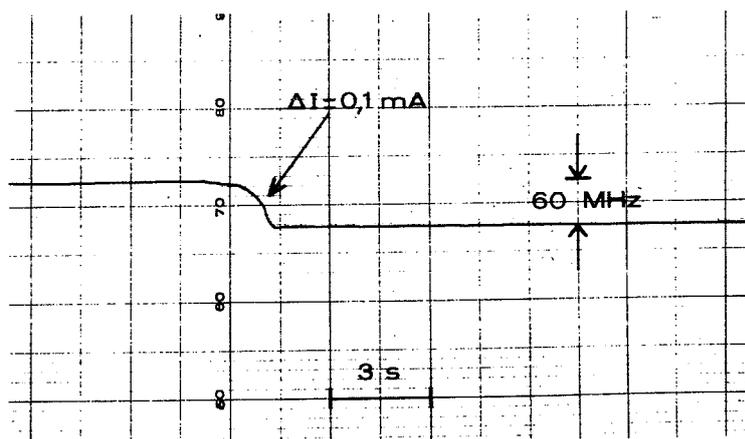


Fig. 23 - Enregistrement en fonction du temps du signal d'erreur appliqué au laser stabilisé sur la raie ${}^2S_{1/2}, F=4 \longleftrightarrow {}^2P_{3/2}, F'=5$ d'un jet atomique de césium. La variation $\Delta I = 0,1$ mA du courant continu injecté a permis la calibration en fréquence de l'échelle verticale. Constante de temps : 3 s.

5-5 DISCUSSION.

Dans la seule tentative d'asservissement d'un laser à GaAs antérieure à la nôtre dont nous ayons connaissance [32], la stabilité en fréquence du laser stabilisé était comparable à la stabilité du laser libre dans notre cas. Cette différence est probablement due à la meilleure régulation de la température du milieu extérieur fournie par notre système. La méthode de stabilisation par l'intermédiaire du courant peut en théorie fournir de très bonnes stabilités à court terme, dans la mesure où la bande passante de la boucle d'asservissement peut être augmentée avec pour seule limitation la qualité de l'électronique. Dans le cas des lasers à gaz ou à colorant, la limitation est généralement introduite par les céramiques piézoélectriques déplaçant l'un des miroirs.

Le régime monomode a aussi été observé en plaçant la diode dans une cavité externe dispersive [33]. Dans ce montage, l'une des extrémités de la cavité reste une face du cristal et l'autre extrémité est constituée par un réseau. La combinaison d'une stabilisation de température telle que la nôtre et d'une cavité externe devrait donner de bons résultats. En plaçant un élément sélecteur convenable à l'intérieur de la cavité, le régime monomode pourrait être maintenu avec des courants largement supérieurs au seuil. Cette solution serait également avantageuse pour le balayage continu. En effet, avec le système que nous avons utilisé, les sauts de mode peuvent laisser des "trous" dans le spectre balayé (Fig. 6), puisqu'on ne peut agir indépendamment sur la position individuelle des modes et sur la position de la courbe de gain. Par contre, avec une cavité externe, on pourrait faire se déplacer sans décalage les modes et la bande passante du sélecteur comme dans un laser à colorant. Les avantages de l'action directe sur la fréquence des modes par variation du courant de la diode seraient conservés (la variation d'indice du cristal produisant une variation du chemin optique à l'intérieur de la cavité externe).

La technique cryogénique que nous avons appliquée au laser à GaAs pourrait également l'être à d'autres lasers à jonction. Le domaine spectral de GaAs peut être déplacé par réalisation d'alliages (par exemple, la présence d'aluminium a pour effet de diminuer la longueur d'onde). Plus généralement, l'emploi d'autres semi-conducteurs permet de couvrir complètement le domaine de longueur d'onde s'étendant de $0,61 \mu\text{m}$ à $31,2 \mu\text{m}$ [34]. Les lasers à jonction ont déjà fourni de nombreux résultats en spectroscopie infra-rouge des raies moléculaires [35].

B - LE LASER A COLORANT.

1 - INTRODUCTION.

Nous ne reviendrons pas ici sur le principe du laser à colorant organique ou sur les différents types de lasers qui ont été utilisés [36]. En effet, le laser à colorant est devenu très rapidement un outil de base de la spectroscopie atomique [37] et ses caractéristiques sont maintenant bien connues. Des appareils réalisant d'excellentes performances sont même commercialisés.

Le premier fonctionnement continu d'un laser à colorant a été obtenu en Juillet 1970 [38], la première oscillation continue monomode a suivi en Mai 1971 [39]. Dès Novembre 1971, nous avons nous-même pu reproduire ce résultat et observer une largeur de raie montrant la possibilité d'applications à la spectroscopie à haute résolution (Fig. 24).

Ces premières études ont été effectuées à partir d'un prototype de Spectra-Physics que nous avons fortement modifié, principalement pour en améliorer la stabilité mécanique (en fait, seules la cellule du

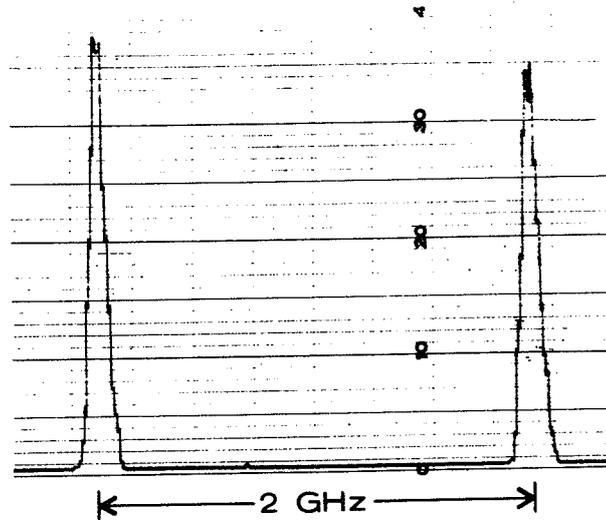


Fig. 24 - Une de nos premières observations du fonctionnement monomode d'un laser à colorant continu (Novembre 1971). Le spectre fourni par un Fabry-Perot sphérique d'intervalle entre ordres 2 GHz est intégré pendant 30 s dans un analyseur multicanaux : 375 passages (sur 400 canaux, à raison de 0,2 ms par canal) synchronisés avec le balayage du Fabry-Perot.

colorant et l'optique d'entrée étaient conservées). La cavité à deux miroirs, de type Hercher-Pike [39], contenait un prisme assurant l'accord grossier de la longueur d'onde émise (Fig. 25). Nous avons sélectionné un mode unique en introduisant un étalon de verre nu, d'épaisseur 2 mm, entre la lentille collimatrice et le prisme. L'étalon, légèrement incliné sur l'axe, était placé sur une monture stable et finement orientable. La fréquence du mode ne pouvait être balayée continûment, par déplacement piézoélectrique du miroir M_1 , que sur une plage limitée à une fraction de la bande passante de l'étalon. La Fig. 24 représente le spectre monomode du laser libre, intégré par un analyseur multicanaux. La largeur de raie était d'environ 75 MHz pour une période de 30 s. Dès cette époque, il aurait été possible de stabiliser la fréquence sans difficultés. Tel quel, le laser nous avait

déjà permis d'exciter sélectivement les composantes hyperfines (distantes de 190 MHz) de la raie D_1 d'un jet atomique de sodium.

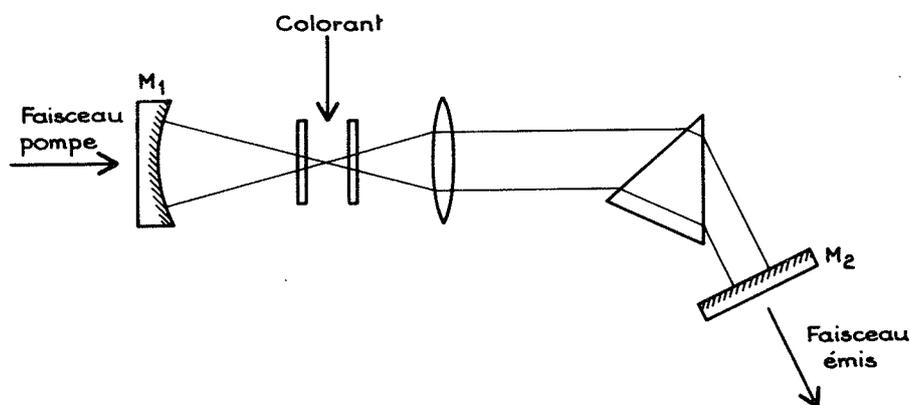


Fig. 25 - Schéma d'une cavité de laser à colorant de type Hercher-Pike. Le sélecteur de mode n'est pas représenté.

L'étape suivante consistait à déplacer simultanément la fréquence du mode laser et celle de la bande passante du sélecteur interne. Ce problème a été confié dans notre laboratoire à J. Pinard et S. Liberman. Dans une cavité ayant la configuration de celle de la Fig. 25, ils ont combiné le prisme et le miroir de sortie M_2 pour former un interféromètre de Michelson [40] (le prisme est dans ce cas un prisme de Littrow dont la face d'entrée et la face de sortie jouent respectivement le rôle de séparatrice et de second miroir). Le sélecteur de type Michelson donne accès à une grande plage de balayage continu (~ 10 GHz) mais limite la puissance du laser monomode. Le laser construit au Laboratoire Aimé Cotton (que nous appellerons pour abrégé "laser LAC") nous a permis d'enregistrer la structure hyperfine des raies D_1 et D_2 du sodium à partir de Décembre 1972 (III,IV).

Pour l'essentiel de notre travail sur le jet de sodium, nous avons employé le laser Spectra-Physics modèle 580 (que nous appellerons

"laser SP"). Dans ce modèle, comme dans le laser LAC, le colorant traverse la cavité laser dans une cellule séparée de l'extérieur par des fenêtres . Le sélecteur de mode est un Fabry-Perot plan à épaisseur variable placé dans une enceinte thermostatée. La stabilité en fréquence est comparable à celle du laser LAC, mais la puissance contenue dans un mode unique peut atteindre plusieurs dizaines de milliwatts. D'autre part, l'amplitude du balayage continu est suffisante pour couvrir la structure hyperfine complète des raies de résonance du sodium (environ 2 GHz).

2 - STABILISATION ET BALAYAGE DE LA FREQUENCE.

Nous décrirons brièvement les montages que nous avons employés avec le laser SP. Les méthodes de stabilisation sont voisines de celles que nous avons décrites dans le cas du laser à GaAs .

2-1 REFERENCE INTERFEROMETRIQUE.

Dans les expériences où il était nécessaire d'effectuer un balayage de la fréquence du laser (Chap.II), celle-ci était asservie à la bande passante d'une cavité externe. L'interféromètre de référence est un Fabry-Perot sphérique confocal de longueur 10 cm (intervalle entre ordres 750 MHz) et d'une finesse voisine de 100 . Les montures des miroirs (dont l'un

est porté par une céramique piézoélectrique) sont vissées sur un "spacer" cylindrique en invar. Le dispositif d'asservissement comporte deux boucles fonctionnant simultanément (Fig. 26). La première boucle permet de verrouiller le mode au sommet d'une résonance de transmission de la cavité passive ; elle a pour but de réduire les fluctuations de fréquence du laser. La seconde boucle maintient la bande passante du sélecteur

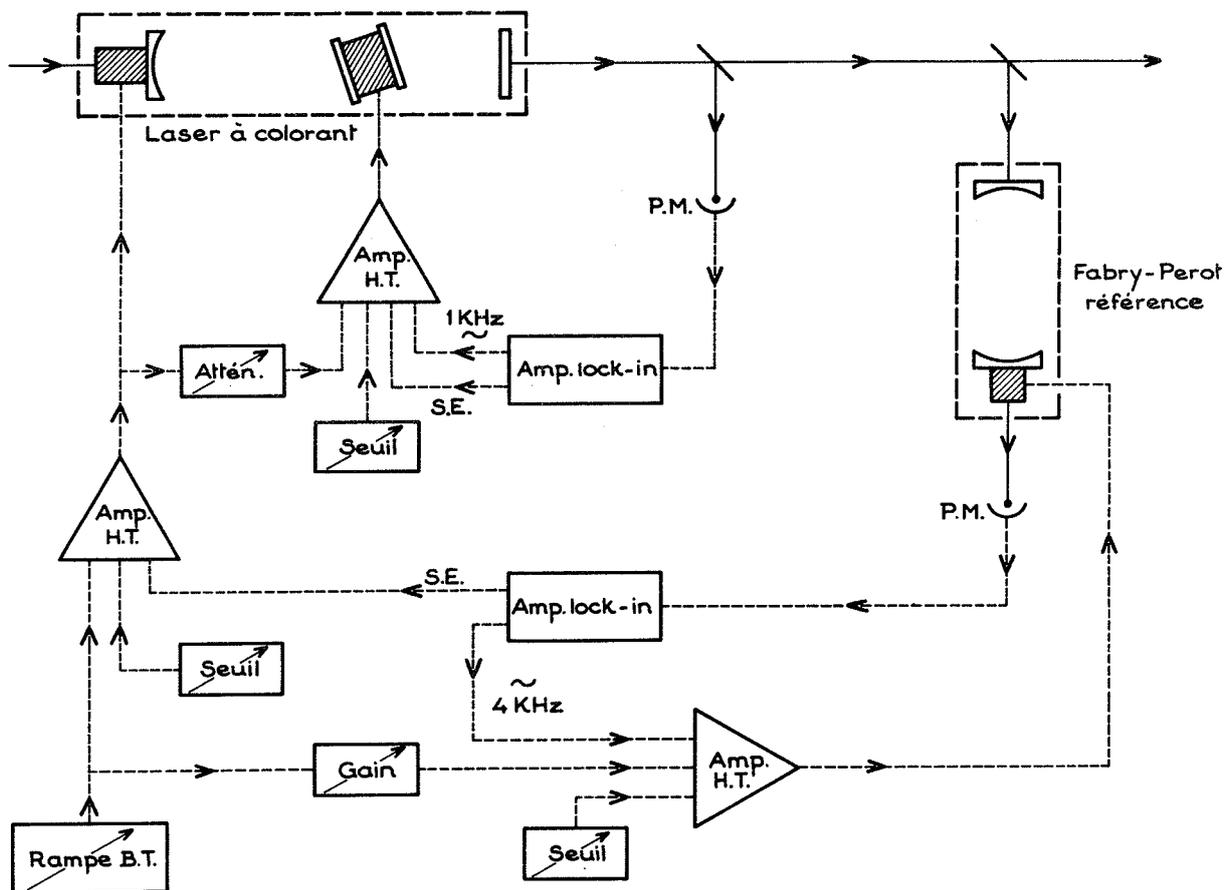


Fig. 26 - Montage utilisé pour stabiliser et déplacer la fréquence du laser à colorant. Le montage comporte deux boucles d'asservissement, permettant respectivement de stabiliser la fréquence du laser au sommet d'une résonance d'une cavité externe accordable et de maintenir la bande passante de l'étalon interne centrée sur la fréquence du laser.

interne centrée sur le mode du laser ; elle évite les sauts de mode et limite les variations lentes d'amplitude au cours du balayage. Cette boucle n'est toutefois pas indispensable. Pour déplacer la fréquence du laser tout en maintenant la stabilisation, une rampe haute-tension est appliquée dans un rapport convenable aux éléments piézo-électriques commandant la longueur de l'interféromètre de référence, de la cavité laser et du Fabry-Perot interne.

Notons que les deux boucles ne font qu'engendrer un signal de correction des fluctuations de fréquence (de valeur moyenne nulle) et un signal continu faible (compensant les dérives, les non-linéarités des élongations des céramiques ou l'imperfection de l'ajustement des trois rampes). Un autre avantage de ce système est la possibilité, pour les expériences préliminaires, d'effectuer des balayages sans asservissement : il suffit pour cela de ne pas fermer les boucles. La largeur de raie du laser asservi est de quelques MHz . L'efficacité de la stabilisation est en effet limitée à court terme par la bande passante assez étroite (~ 200 Hz) de l'ensemble céramique-miroir du laser SP . Le système d'asservissement du laser IAC est différent [40]. Dans les premiers enregistrements de structure hyperfine (Chap. II), il était également piloté par une cavité externe. Dans l'expérience sur l'effet Autler-Townes optique (Chap. IV), où il fournissait le rayonnement sonde, il était piloté par un interféromètre de type Michelson ("sigmamètre") [41].

2-2 REFERENCE ATOMIQUE.

Dans certaines études : croisements de niveaux (Chap. III), effet Autler-Townes (Chap. IV), la fréquence du laser devait être verrouillée au centre d'une transition hyperfine du sodium. On utilisait à cet effet la fluorescence du jet atomique produite par un faisceau de faible intensité prélevé sur le faisceau issu du laser à colorant. Le dispositif d'asservissement est représenté sur la Figure 27. La boucle agissant sur le sélecteur interne est la même que dans le montage précédent (Fig. 26). La boucle agissant sur la cavité laser utilise une modulation de la fréquence du laser, mais la stabilité du laser libre et la finesse de la raie de référence étaient en général suffisantes pour que l'amplitude de cette modulation puisse être limitée à quelques MHz.

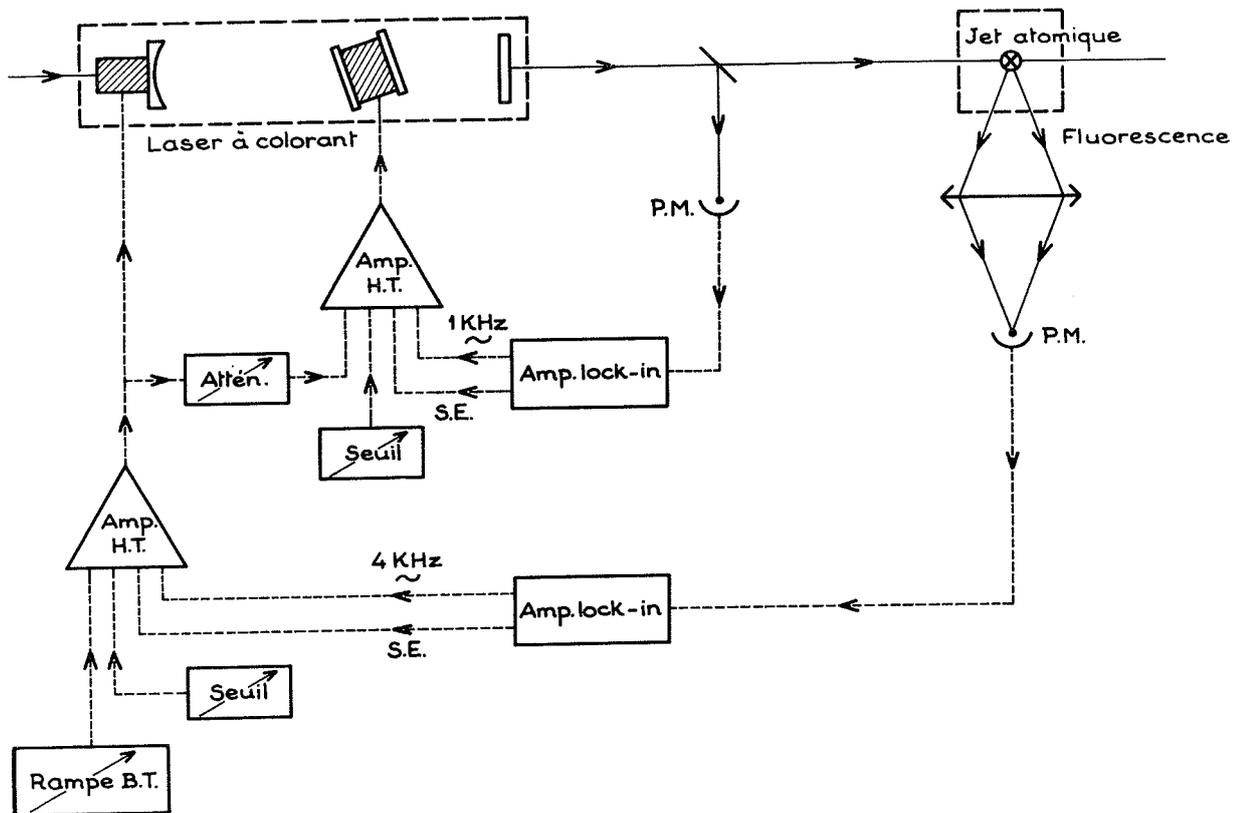


Fig. 27 - Montage utilisé pour la stabilisation de fréquence du laser à colorant au sommet d'une raie hyperfine d'un jet atomique de sodium.

La Figure 28 donne un exemple des résultats obtenus. Dans ce cas, un faisceau laser unique, de faible intensité, rencontrait le jet atomique à angle droit. Ce faisceau donnait lieu simultanément à un signal de fluorescence, utilisé pour l'asservissement, et à un signal non-optique obtenu en détection de type Rabi (II-B). La figure représente un enregistrement de ce dernier sur une période d'environ 1 minute, alors que le laser était stabilisé au sommet de la composante $F=2 \longleftrightarrow F'=1$ de la raie D_1 . La largeur de cette raie était de 20 MHz, en détection par fluorescence comme en détection de type Rabi. On en déduit que les variations de fréquence du laser étaient de l'ordre de ± 100 KHz avec une constante de temps de 0,3 s. La stabilité à long terme, pour un temps d'intégration de 1 minute, était au moins 10 fois meilleure, c'est-à-dire en valeur relative proche de 10^{-11} .

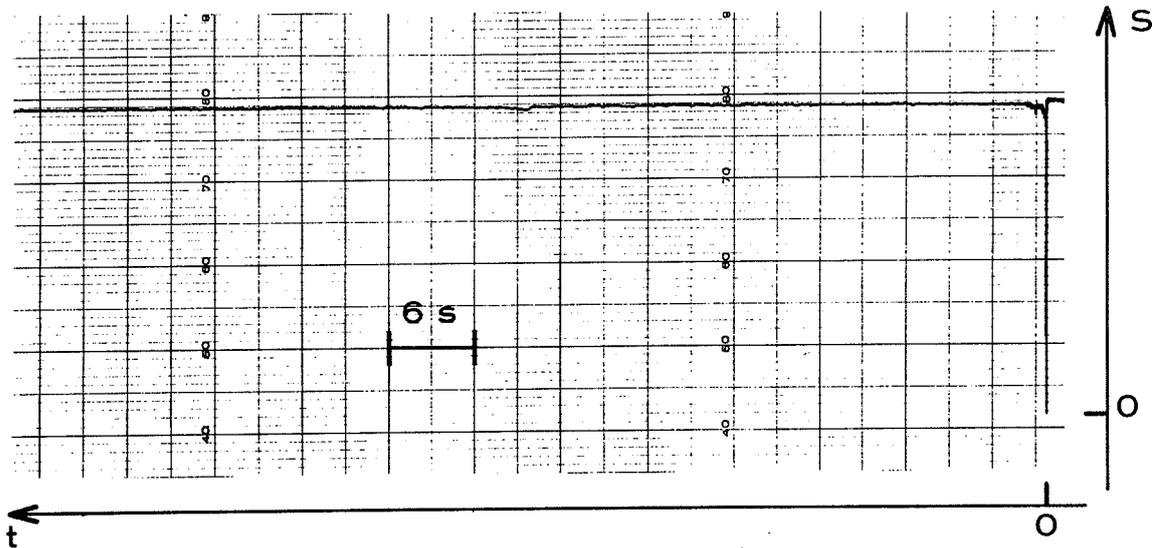


Fig. 28 - Enregistrement en fonction du temps du signal de résonance optique obtenu en détection de type Rabi avec le laser à colorant stabilisé au sommet de la raie ${}^2S_{1/2}, F=2 \longleftrightarrow {}^2P_{1/2}, F'=1$ d'un jet atomique de sodium. La boucle d'asservissement a été fermée à l'instant $t=0$. Constante de temps : 0,3 s.

Les dispositifs de la Figure 26 et de la Figure 27 peuvent être combinés en vue d'obtenir une bonne stabilité à la fois à court terme et à long terme [42]. De façon schématique, on peut dire que le signal d'erreur engendré par les fluctuations rapides de fréquence autour du pic de transmission de la cavité externe est appliqué au laser, tandis que celui qui traduit la dérive de fréquence par rapport à la raie de fluorescence du jet est appliqué à la cavité de référence. Nous avons parfois employé cette méthode, en réalisant un montage composé de trois boucles d'asservissement fonctionnant simultanément.

Vis-à-vis de la largeur naturelle de 10 MHz des raies de résonance du sodium, les résultats que nous venons de décrire étaient suffisants. Dans d'autres laboratoires, la stabilisation de lasers à colorant a pu donner lieu à des performances à caractère métrologique [42 - 44]. Celles-ci sont rendues possibles par l'utilisation d'éléments très rapides pour corriger l'épaisseur optique de la cavité laser (céramiques piézo-électriques à grande fréquence de résonance, modulateurs électro-optiques).

COMPARAISON DU LASER A COLORANT
ET DU LASER A GaAs

Pour conclure ce chapitre, nous résumons dans le tableau comparatif suivant les caractéristiques essentielles des deux types de laser accordable que nous avons utilisés. Les chiffres figurant dans ce tableau ne correspondent pas obligatoirement aux performances optimales décrites en ordre dispersé dans la littérature, mais représentent les performances typiques des lasers que nous avons employés dans nos expériences.

	LASER A COLORANT Rhodamine 6G CONTINU	LASER A JONCTION GaAs CONTINU
Milieu amplificateur	Colorant organique	Semi-conducteur
Inversion de population	Pompage optique	Jonction p-n
Seuil de l'effet laser	Puissance du faisceau pompe (laser Ar ⁺ , 5145 Å) : 150 mW	Courant injecté (T= 77 K) : 500 mA
Espacement des modes de la cavité	Quelques centaines de MHz	Quelques Angström
Déplacement grossier de la longueur d'onde	Prisme	Température
Domaine d'accord	700 Å (pour une solution donnée)	100 Å (pour un cristal donné)
Extension du domaine	Changement du solvant (Méthanol, HFIP)	Alliages (Ga _{1-x} Al _x As)
Sélection d'un mode	Fabry-Perot, Michelson	Courant ou température
Déplacement fin de la fréquence du mode	Céramique piézoélectrique (variation de longueur)	Courant (variation d'indice)
Plage de balayage continu	10 GHz	30 GHz
Puissance en régime monomode	30 mW (puissance pompe 1 W)	1 mW (T= 77 K)
Stabilité en fréquence (τ ~ 0,3 s)	laser libre	30 MHz
	laser asservi	1 MHz

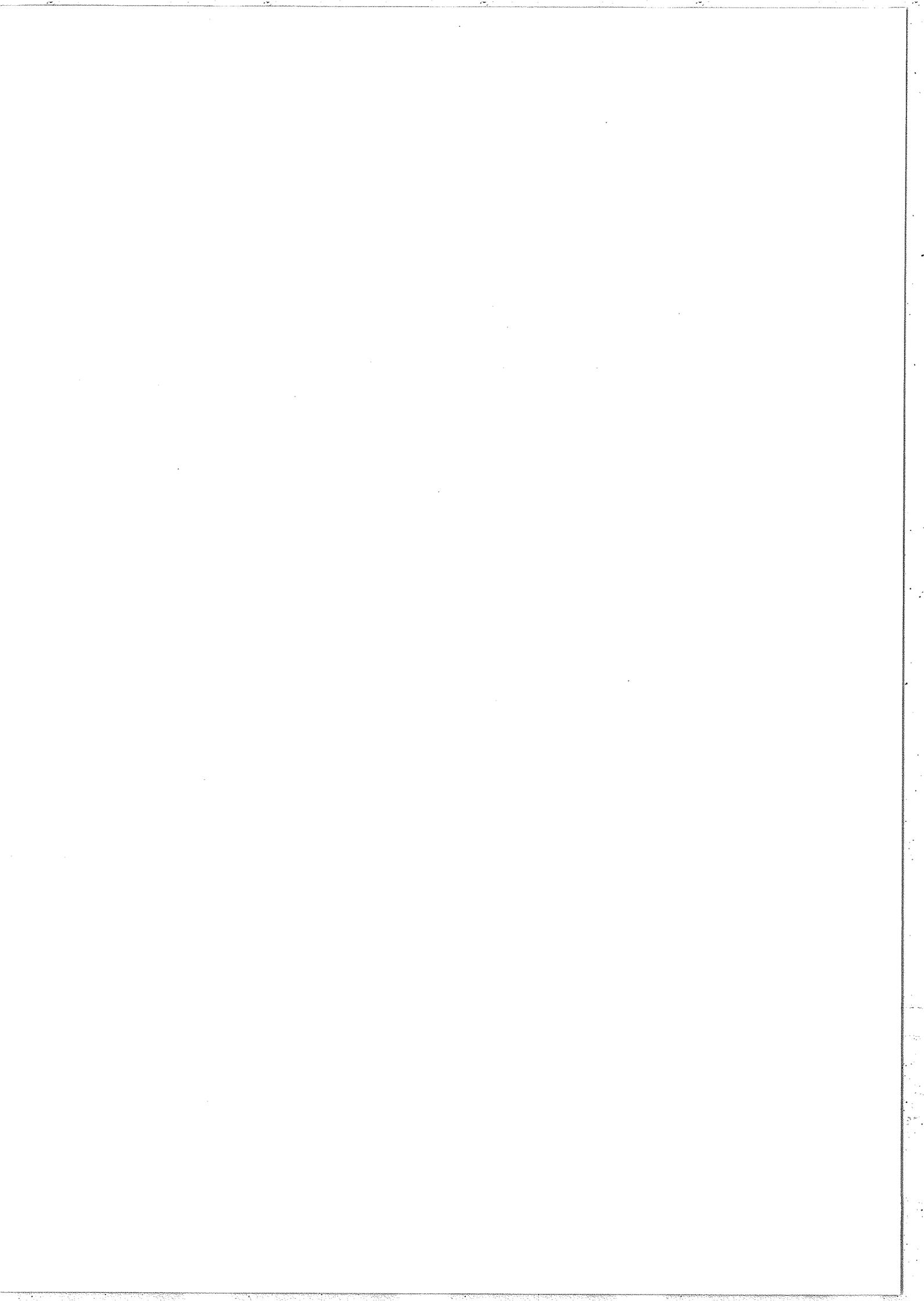


BIBLIOGRAPHIE DU CHAPITRE I

- [1] "Laser Spectroscopy of Atoms and Molecules", édité par H. Walther, Topics in Applied Physics, Vol. 2, Springer-Verlag, Berlin (1976).
- [2] "High-Resolution Laser Spectroscopy", édité par K. Shimoda, Topics in Applied Physics, Vol. 13, Springer-Verlag, Berlin (1976).
- [3] J. M. Yarborough, Appl. Phys. Lett. 24, 629 (1974).
- [4] A. Donzel et C. Weisbuch, Opt. Commun. 17, 153 (1976).
- [5] N. G. Basov, B. Vul et Y. M. Popov, ZhETF 37, 587 (1959)
[Sov. Phys. JETP 10, 416 (1960)].
- [6] W. P. Dumke, Phys. Rev. 127, 1559 (1962).
- [7] R. N. Hall, G. E. Fenner, J. D. Kingsley, T. J. Soltys et R. O. Carlson, Phys. Rev. Lett. 9, 366 (1962).
- [8] M. I. Nathan, W. P. Dumke, G. Burns, F. D. Hill et G. J. Lasher, Appl. Phys. Lett. 1, 62 (1962).
- [9] T. M. Quist, R. H. Rediker, R. J. Keyes, W. E. Krag, B. Lax, A. L. McWhorter et H. J. Zeiger, Appl. Phys. Lett. 1, 91 (1962).
- [10] B. Bolger et J. C. Diels, Phys. Lett. 28A, 401 (1968).
- [11] S. Siahatgar et U. E. Hochuli, IEEE J. Quant. Electron. QE-5, 295 (1969).
- [12] U. E. Hochuli, P. Haldemann et S. Siahatgar, J. Appl. Phys. 40, 3374 (1969).
- [13] R. E. Hebner, Jr., et K. J. Nygaard, J. Opt. Soc. Amer. 61, 1455 (1971).
- [14] R. T. Ku, J. T. Verdeyen, B. E. Cherrington et L. Goldstein, J. Appl. Phys. 43, 4579 (1972).

- [15] G. Singh, P. DiLavore et C. O. Alley, IEEE J. Quant. Electron. QE-7, 196 (1971).
- [16] Yu. A. Bykovskii, V. L. Velichanskii, V. K. Egorov, A. L. Irshinskii, A. V. Makovkin et V. A. Maslov, ZhETF Pis. Red. 17, 302 (1973) [JETP Lett. 17, 216 (1973)].
- [17] A. S. Pine, C. J. Glassbremer et J. A. Kafalas, IEEE J. Quant. Electron. QE-9, 800 (1973).
- [18] M. G. A. Bernard et G. Duraffourg, Phys. Stat. Solidi 1, 699 (1961).
- [19] G. Burns et M. I. Nathan, Proc. IEEE 52, 770 (1964).
- [20] "Gallium Arsenide Lasers", édité par C. H. Gooch, Wiley-Interscience Londres (1969).
- [21] H. Kressel, in "Advances in Lasers", Vol. 3, édité par A. K. Levine et A. J. De Maria, Marcel Dekker, New York (1971).
- [22] E. M. Phillip-Rutz et H. D. Edmonds, Appl. Opt. 8, 1859 (1969).
- [23] W. E. Engeler et M. Garfinkel, J. Appl. Phys. 34, 2746 (1963).
- [24] I. Hayashi, M. B. Panish, P. W. Foy et S. Sumski, Appl. Phys. Lett. 17, 109 (1970).
- [25] J. Feinleb, S. Groves, W. Paul et R. Zallen, Phys. Rev. 131, 2070 (1963).
- [26] K. W. Nill, F. A. Blum, A. R. Calawa et T. C. Harman, Appl. Phys. Lett. 21, 132 (1972).
- [27] S. Takamiya, F. Kitasawa et J. I. Nishizawa, Proc. IEEE 56, 135 (1968).
- [28] W. E. Ahearn et J. W. Crowe, IEEE J. Quant. Electron. QE-2, 597 (1966).
- [29] K. L. Konnerth et J. C. Marinace, IEEE J. Quant. Electron. QE-4, 173 (1968).
- [30] P. Davidovits et R. Novick, Proc. IEEE 54, 155 (1966).
- [31] P. Cerez, M. Arditi et A. Kastler, C. R. Acad. Sc. 267B, 282 (1968).
- [32] Yu. A. Bykovskii, V. L. Velichanskii, I. G. Goncharov et V. A. Maslov, ZhETF 57, 1109 (1969) [Sov. Phys. JETP 30, 605 (1970)].
- [33] R. Ludeke et E. P. Harris, Appl. Phys. Lett. 20, 499 (1972).
- [34] J. E. Geusic, W. B. Bridges, J. I. Pankove, Proc. IEEE 58, 1419 (1970).
- [35] E. D. Hinkley, K. W. Nice et F. A. Blum, in ref. [1].
- [36] "Dye Lasers", édité par F. P. Schäfer, Topics in Applied Physics, Vol. 1, Springer-Verlag, Berlin (1973).

- [37] W. Lange, J. Luther et A. Steudel, *Adv. Atom. Molec. Phys.* 10, 173 (1974).
- [38] O. G. Peterson, S. A. Tuccio et B. B. Snavely, *Appl. Phys. Lett.* 17, 245 (1970).
- [39] M. Hercher et H. A. Pike, *Opt. Commun.* 3, 346 (1971).
- [40] S. Liberman et J. Pinard, *Appl. Phys. Lett.* 24, 142 (1974).
- [41] P. Juncar et J. Pinard, *Opt. Commun.* 14, 438 (1975).
- [42] R. E. Grove, F. Y. Wu et S. Ezekiel, *Opt. Engin.* 13, 531 (1974).
- [43] R. L. Barger, J. B. West et T. C. English, *Appl. Phys. Lett.* 27, 31 (1975).
- [44] M. Steiner, H. Walther et K. Zygan, *Opt. Commun.* 18, 2 (1976).



Chapitre II

LES METHODES DE DETECTION DE LA RESONANCE
OPTIQUE SUR UN JET ATOMIQUE ET LEUR APPLICATION
A LA SPECTROSCOPIE LASER A HAUTE RESOLUTION

Photo I (ci-contre) - Vue d'ensemble de l'appareil de jet atomique.
L'appareil est ici monté pour une expérience de photo-déviaton
(en particulier, les aimants défecteurs sont enlevés). A la
gauche de la photographie, on remarque le spectromètre de masse.

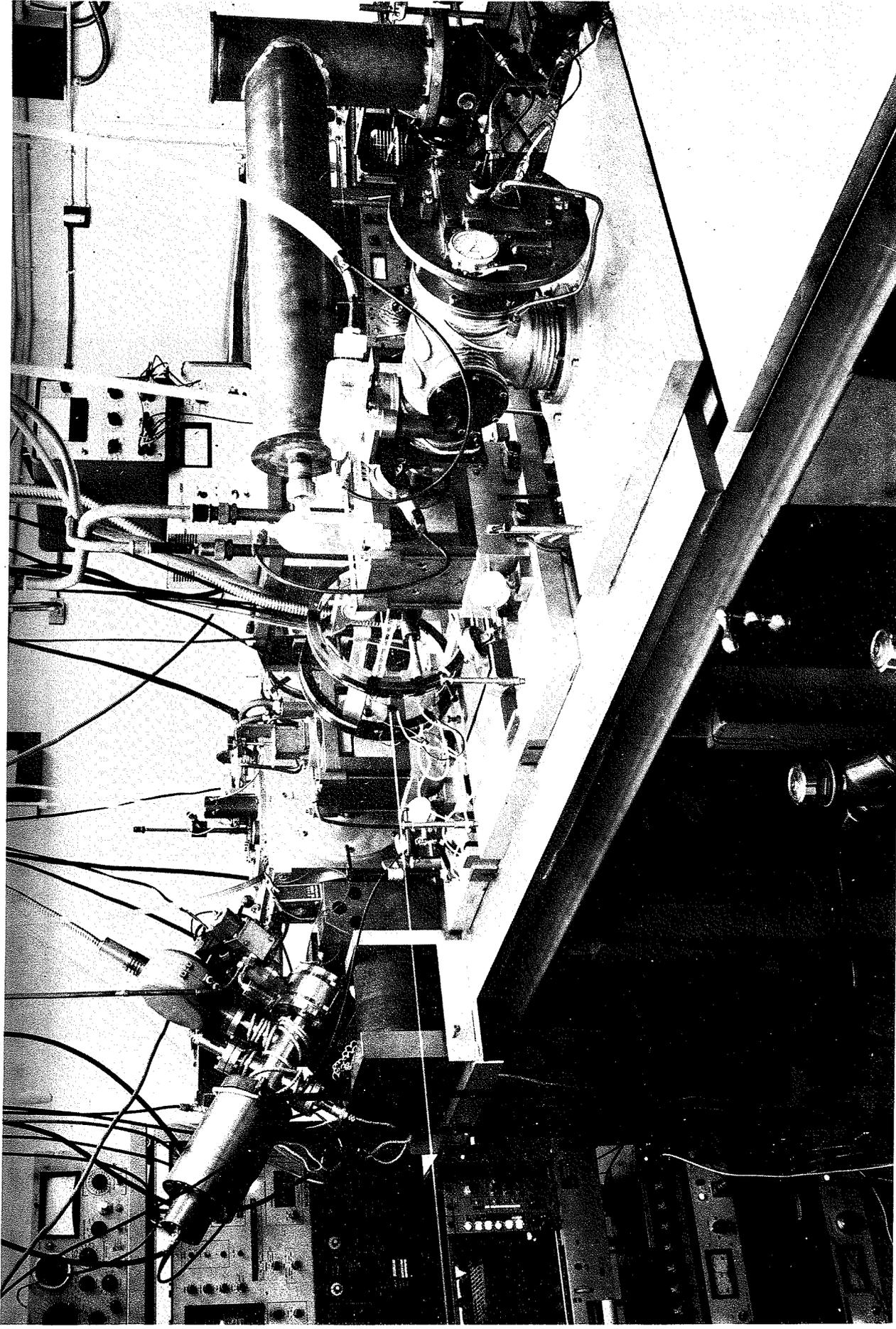
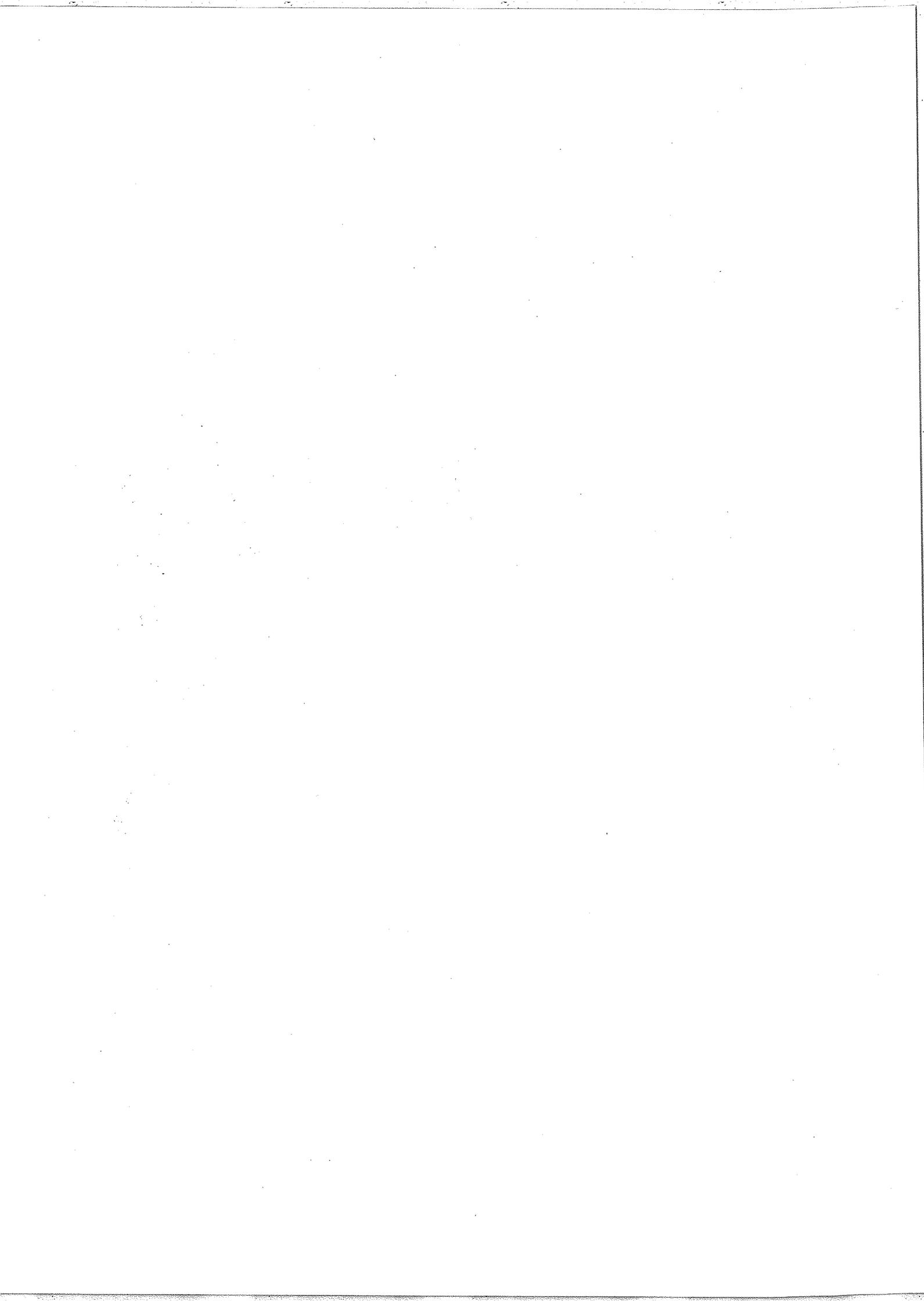


Photo I



INTRODUCTION

L'utilisation d'un jet atomique (ou moléculaire) est le moyen le plus ancien et le plus simple dans son principe de réduire l'élargissement des raies par effet Doppler en spectroscopie optique. En éclairant transversalement un jet atomique, on limite l'interaction à des atomes dont la projection de la vitesse sur la direction du faisceau lumineux est voisine de zéro. Par comparaison avec une vapeur à la même température T que la source du jet, la largeur Doppler est réduite d'un facteur approximativement égal au rapport de collimation C du jet [1].

En dehors de leur directivité, les jets atomiques possèdent une autre caractéristique essentielle, qui est leur faible densité (de l'ordre de 10^8 atomes/cm³). Cette densité correspond à celle d'un gaz dont la pression serait d'environ 10^{-8} torr. L'existence d'une direction privilégiée et la faible densité rendant les collisions très rares, les atomes du jet peuvent être considérés comme des atomes isolés.

Il est bien connu que le premier jet atomique (d'origine thermique) a été réalisé par Dunoyer en 1911 [2]. C'est encore Dunoyer qui effectua la première expérience de résonance optique sur un jet atomique en matérialisant, grâce à sa lumière de fluorescence, un jet de sodium excité à l'aide d'une flamme sodée [3]. En 1926, Bogros montrait sur l'exemple du lithium qu'il était possible de réduire l'effet Doppler en utilisant comme source de lumière un jet atomique excité par la lumière de résonance [4]. Des sources lumineuses à jet atomique plus générales ont ensuite été réalisées par décharge de haute-fréquence suivant Bogros et Esclangon [5] ou par bombardement électronique suivant Minkowski et

Bruck [6], Meissner et Luft [7]. A cette occasion, ces derniers auteurs étaient en 1937 les premiers à résoudre la structure hyperfine de l'état excité (190 MHz) dans la raie D_1 du sodium ¹⁾. Jackson et Kuhn ont employé les jets atomiques en absorption pour étudier les raies de résonance de nombreux éléments (Li, K, Na, Mg, Ag, Al). En particulier, ils confirmaient en 1938 les résultats de Meissner et Luft sur les raies de résonance du sodium [9]. Dans tous les cas, la lumière émise ou transmise dans une direction perpendiculaire au jet atomique devait faire l'objet d'une analyse spectrale à haute résolution par un interféromètre de Fabry-Perot.

Cette analyse spectrale devient inutile si l'on dispose d'un rayonnement optique possédant les propriétés suivantes :

- Fréquence accordable (i)
(à une raie d'un élément donné),
- Faible largeur spectrale (ii)
(par rapport à la largeur naturelle de la raie),
- Fréquence variable continûment (iii)
(sur une plage couvrant la structure de la raie).

C'est alors le rayonnement excitateur lui-même qui joue le rôle de l'appareil résolvant. La largeur de raie a pour limite fondamentale la largeur naturelle, liée à la durée de vie de l'état excité. Les autres facteurs qui y contribuent sont la largeur spectrale du rayonnement et l'effet Doppler résiduel provenant de la divergence du faisceau lumineux et du jet atomique.

Les conditions (i) à (iii) se sont trouvées réunies avec l'apparition du laser à colorant continu monomode. Cinq articles décrivant les premières expériences de spectroscopie à haute résolution par jet

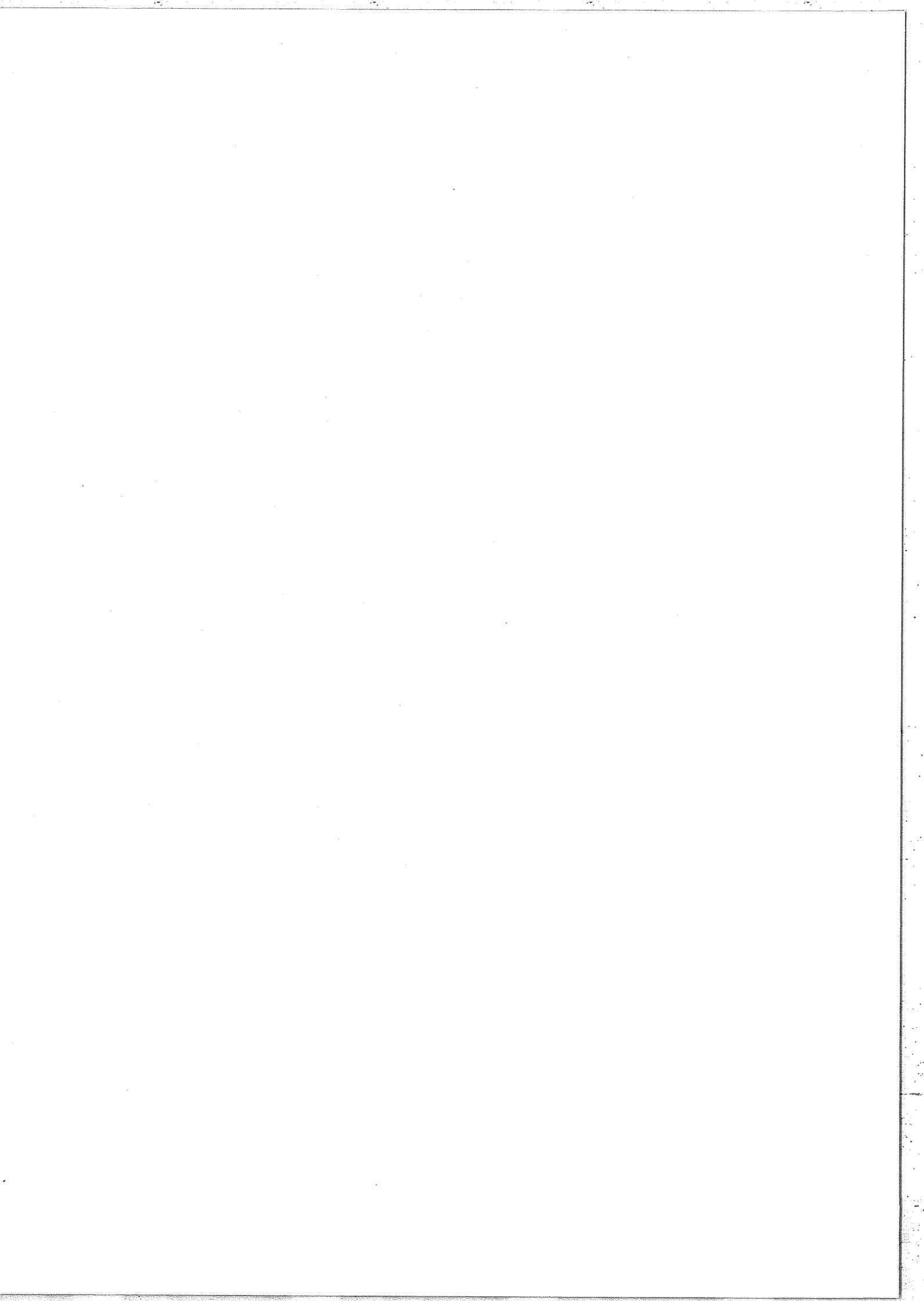
¹⁾ La structure hyperfine de l'état fondamental (environ 1 800 MHz) avait été résolue en 1928 par Schüler, grâce à une lampe refroidie à l'hydrogène liquide [8].

atomique et laser accordable sont parus au cours du premier semestre de 1973 [10 - 12, III, IV]. Ces diverses expériences utilisaient le test commun des raies de résonance du sodium ¹⁾. La largeur de raie observée était inférieure à 20 MHz. Pour la première fois, la structure hyperfine (inférieure à 60 MHz) de la raie D_2 avait pu être résolue par spectroscopie optique directe.

Dans trois de ces expériences initiales [10 - 12], la résonance était détectée par la fluorescence du jet atomique. Dans les deux autres expériences, nous avons employé les méthodes de déviation magnétique [III] et de photo-déviation [IV], fondées sur un changement de trajectoire des atomes après leur interaction résonnante avec la lumière. Ici, le signal de résonance est fourni par la détection des atomes eux-mêmes. Nous avons mis au point ces méthodes de détection non-optique de la résonance optique en vue de l'étude d'atomes radioactifs. Une méthode de déviation magnétique modifiée a déjà permis l'étude d'isotopes du sodium à courte durée de vie [14].

La technique expérimentale du jet atomique est décrite dans les livres classiques de N. F. Ramsey [15] et K. F. Smith [16]. Ces livres traitent essentiellement de l'application des jets atomiques à la spectroscopie des radiofréquences. Des articles de revue sur l'application des jets atomiques à la spectroscopie optique ont été publiés par K. W. Meissner en ce qui concerne les méthodes anciennes [17], et par P. Jacquinot en ce qui concerne la spectroscopie laser [18].

¹⁾ Auparavant, une autre expérience de spectroscopie laser "sans effet Doppler" avait permis de résoudre la structure hyperfine de la raie D_1 [13]. Il s'agissait d'une expérience d'absorption saturée sur une vapeur, qui utilisait un laser à colorant fonctionnant en impulsions.



UNE EXPERIENCE SANS LASER

Les propriétés (i) à (iii) requises pour le rayonnement dans une expérience de spectroscopie par jet atomique sans analyse spectrale de la lumière émise ou absorbée sont immédiatement réalisées par le laser à colorant continu monomode. Mais l'une ou l'autre de ces caractéristiques peut être réalisée à l'extérieur de la cavité laser. Par exemple, dans le cas d'un laser à colorant fonctionnant en impulsions courtes, la propriété (ii) peut être obtenue par filtrage à l'aide d'une cavité passive extérieure [13]. L'utilisation d'un laser à gaz ($^{202}\text{Hg}^+$) a permis, par mesure de l'absorption produite par un jet atomique de rubidium, de déterminer avec une précision de quelques MHz le déplacement isotopique de la raie D_1 entre les isotopes Rb^{85} et Rb^{87} [19]. Ici, l'équivalence avec les propriétés (i) et (iii) était obtenue par balayage magnétique des niveaux atomiques du rubidium.

Des expériences de ce type peuvent même être effectuées à l'aide d'une source de lumière conventionnelle. Si on utilise de la lumière de résonance, les propriétés (ii) et (iii) doivent être réalisées artificiellement. Une première possibilité est d'interposer une cavité Fabry-Perot accordable avant l'interaction avec le jet atomique. La densité d'énergie lumineuse utilisable est augmentée si le jet atomique traverse la cavité [20]. Cette technique a été employée pour la première fois par D. A. Jackson qui détectait la lumière transmise [21]. Nous l'avons également utilisée, sur un jet atomique de rubidium, en conjonction avec une détection non optique de type Rabi.

Une autre possibilité est d'utiliser une cellule d'absorption contenant les mêmes atomes que la source de lumière de résonance pour la fonction d'affinement (ii), et un champ extérieur pour la fonction de balayage (iii). Nous allons décrire très brièvement une telle expérience, que nous avons également effectuée avant de disposer d'un laser accordable (un compte-rendu détaillé en est donné dans la référence [1]).

1 - PRINCIPE DE L'EXPERIENCE.

La source du faisceau lumineux éclairant transversalement un jet atomique de sodium est une lampe spectrale à vapeur de sodium. Un pic d'absorption est découpé au centre des raies émises par la lampe à l'aide d'un jet atomique auxiliaire dense de sodium. Les résonances sont observées en déplaçant la fréquence des raies d'absorption du jet principal par effet Stark.

La technique expérimentale est celle qui a été introduite par Marrus et ses collaborateurs pour l'étude de l'effet Stark dans les raies de résonance d'autres atomes alcalins [22, 23]. Le cas du sodium est toutefois compliqué par un recouvrement des résonances qui nous a obligés à isoler les raies D_1 et D_2 émises par la lampe et à les affiner par absorption. Cette expérience fournit donc un bon exemple des difficultés à surmonter en l'absence d'une source laser. La détection de la résonance est effectuée selon la méthode de déviation magnétique, que nous décrirons dans la Section B de ce chapitre.

Si les polarisabilités électriques α des niveaux connectés par la transition optique sont connues, la méthode est applicable à la mesure de déplacements isotopiques [24] et de structure hyperfine [25]. Dans notre expérience, nous avons au contraire déterminé ces polarisabilités en prenant comme référence l'écart hyperfin $\Delta\nu_g$ de l'état fondamental, connu avec une très grande précision ($\Delta\nu_g = 1772$ MHz).

Pour simplifier l'interprétation de l'expérience, nous ne considérerons que le cas de la raie D_1 . De même, nous ignorerons la structure hyperfine de l'état excité, petite devant le déplacement Stark ($\sim \Delta\nu_g$). Dans ces conditions, la raie D_1 comporte 2 composantes hyperfines que nous notons (k) et (l), respectivement issues des niveaux $F=1$ et $F=2$ de l'état fondamental. Un signal de résonance doit évidemment être observé en champ nul, où les raies d'absorption des atomes du jet coïncident avec le centre des raies d'émission de la lampe (Fig. 1-a). En champ électrique non nul, la fréquence des

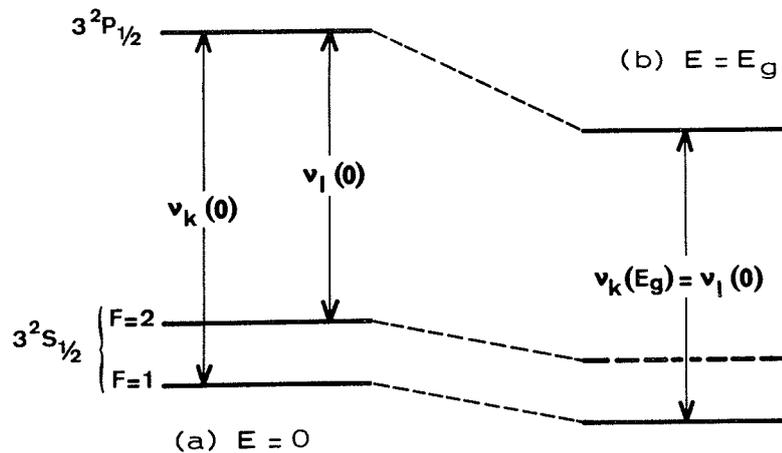


Fig. 1 - Déplacement des niveaux d'énergie des atomes du jet atomique de sodium (raie D_1) par le champ électrique.

transitions des atomes du jet diminue. Pour la valeur $E = E_g$ du champ électrique, cette diminution de fréquence atteint la valeur $\Delta\nu_g$:

$$\frac{1}{2} [\alpha(^2P_{1/2}) - \alpha(^2S_{1/2})] E_g^2 = \Delta\nu_g \quad . \quad (1)$$

La fréquence de (k) dans le jet devient alors égale à celle de (l) dans la lampe (Fig. 1-b), et une nouvelle résonance doit se produire.

2 - AFFINEMENT PAR ABSORPTION et BALAYAGE ELECTRIQUE.

Le dispositif expérimental permettant l'affinement des raies de la lampe et le déplacement des niveaux des atomes du jet est schématisé sur la Fig. 2 . La source lumineuse est une lampe à décharge à vapeur de sodium. L'une des raies D est isolée à l'aide d'un filtre interférentiel (Spectrum Systems) de transmission 30% et de bande passante 3 Å . La cellule d'absorption comporte de bas en haut un creuset où l'on vaporise le sodium, un collimateur et une plaque refroidie à l'azote liquide qui recueille les atomes au-dessus de la région de passage du faisceau lumineux. Le collimateur est constitué de canaux juxtaposés qui déterminent 5 jets verticaux avec une collimation de 1/8 correspondant à une largeur des raies d'absorption de l'ordre de 200 MHz. Le jet atomique principal, de direction horizontale, passe entre les plaques de champ électrique. L'une d'entre-elles, en verre (rendu conducteur par chauffage), est traversée par la lumière de résonance. Les plaques sont distantes de 0,9 mm et sont capables de supporter un champ électrique de 500 KV/cm .

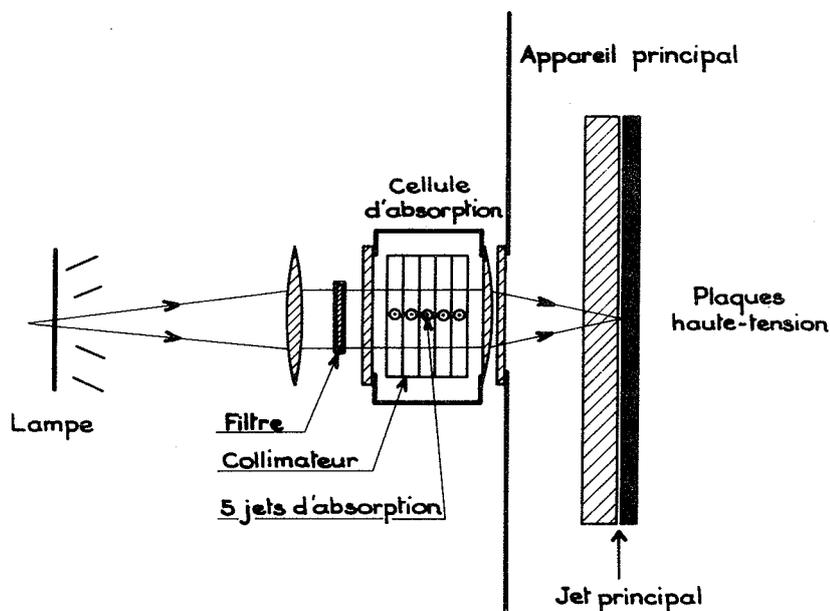


Fig. 2 - Schéma du dispositif utilisé pour l'affinement des raies émises par la lampe et le balayage électrique des niveaux d'énergie du jet atomique.

3 - RESULTATS et DISCUSSION.

La Fig. 3 représente la variation du signal de résonance optique observée, pour la raie D_1 , en variant le champ électrique. Les résonances apparaissent en absorption sur le profil provenant du spectre d'émission de la lampe. La résonance centrée sur la valeur du champ E_e doit être associée à l'écart hyperfin ($\Delta\nu_e = 190$ MHz) de l'état excité. On vérifie que $(E_e/E_g)^2 \approx \Delta\nu_e/\Delta\nu_g$. L'observation de cette résonance donne une idée de la résolution obtenue.

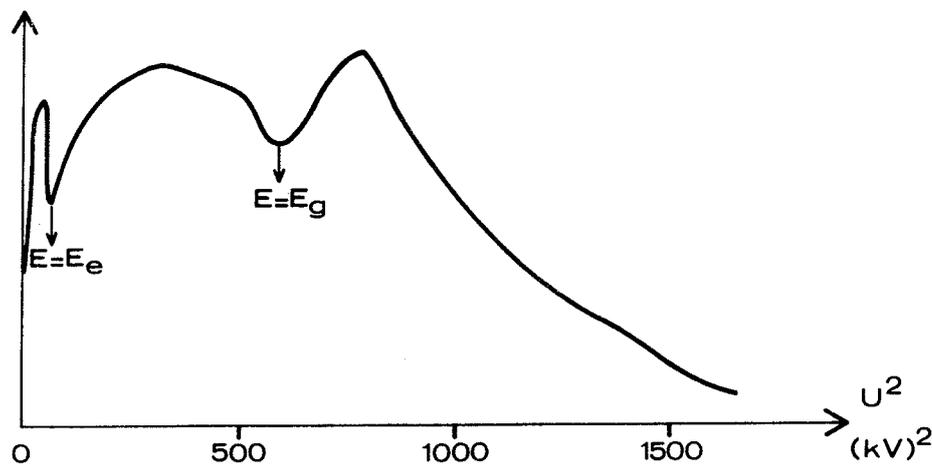


Fig. 3 - Signal de résonance optique (raie D_1) en fonction du carré de la tension U appliquée aux plaques de champ électrique.

Il est à noter que la méthode de détection non optique de type Rabi est très sensible et, de plus, spécialement favorable dans les cas d'excitation par une source conventionnelle. Dans les conditions de cette expérience (lampe placée à environ 20 cm du jet principal), le rapport du signal de résonance optique au fond observé en coupant le jet atomique pouvait atteindre 10/1. L'obtention de ce résultat serait impossible par détection de la lumière absorbée (à cause de la lumière transmise) et difficile par détection de la lumière de fluorescence (à cause de la lumière diffusée parasite).

Malgré ces circonstances favorables, il nous avait fallu, dans cette expérience particulière, réaliser un compromis entre la largeur de raie et le rapport Signal/Bruit. De manière générale, dans les expériences employant une source lumineuse conventionnelle, on est limité ou par la grande largeur des raies émises par la source, ou, si l'on diminue cette largeur par un procédé annexe (interféromètre, absorption), par la faiblesse du signal. Aux propriétés du rayonnement (i) à (iii) nécessaires dans une expérience de spectroscopie à haute résolution par jet atomique, il convient donc d'ajouter :

- densité spectrale d'énergie suffisante.

(iv)

En conclusion, on peut dire que, par opposition avec les études des Chapitres III et IV, le laser ne joue pas en théorie un rôle fondamental dans les méthodes de spectroscopie décrites dans ce chapitre. Mais, en pratique, c'est le développement des lasers accordables qui a permis leur essor en leur donnant leur généralité et leur finesse.

LES TRANSITIONS ETUDIEES

Les expériences décrites dans ce chapitre et les suivants mettent en jeu les niveaux des raies de résonance de Na^{23} et Cs^{133} représentés sur la Fig. 4 . Nous rappelons que, si le laser à colorant Rhodamine 6G

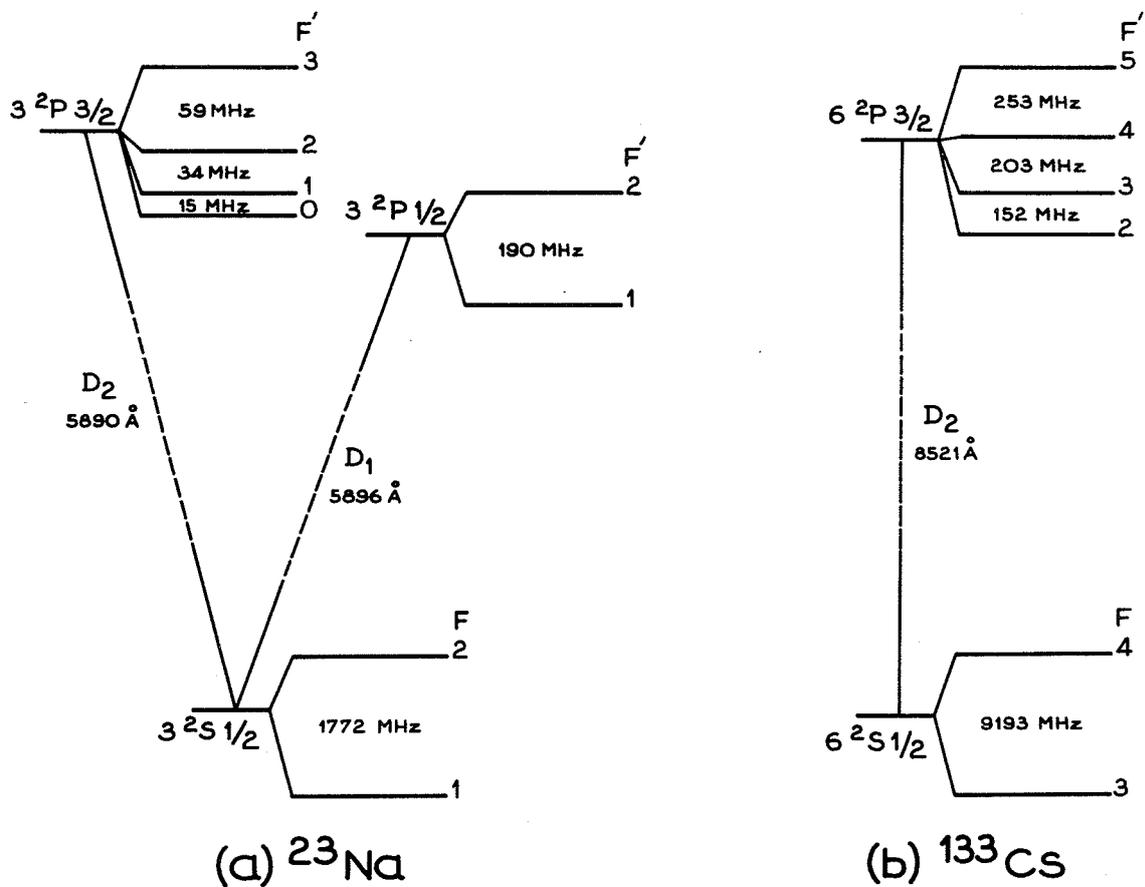


Fig. 4 - Diagramme des niveaux d'énergie des raies de résonance du sodium et du césium intervenant dans nos expériences (échelle non respectée).

peut être accordé aux raies D_1 (5896 Å) et D_2 (5890 Å) du sodium, le laser à semi-conducteur GaAs ne nous a permis d'atteindre que la raie D_2 (8521 Å) du césium, dont la raie D_1 (8943 Å) est assez éloignée. Les niveaux hyperfins de l'état fondamental $^2S_{1/2}$ sont notés F , les niveaux hyperfins de l'état excité $^2P_{1/2}$ ou $^2P_{3/2}$ sont notés F' . Les valeurs des écarts de structure hyperfine indiquées sur la figure étaient connues avec précision, avant nos expériences, grâce aux techniques de la spectroscopie hertzienne. Les méthodes de double-résonance et de croisements de niveaux ont permis de mesurer, outre la structure hyperfine, la durée de vie (ou la largeur naturelle) de l'état excité : $\tau = 16$ ns ($\gamma = 10$ MHz) pour le sodium et $\tau = 30$ ns ($\gamma = 5,3$ MHz) pour le césium. Les références à ces nombreux travaux expérimentaux sont données dans un article de revue récent sur les atomes alcalins [26]. Notons que la structure hyperfine de l'état fondamental est beaucoup plus grande que celle de l'état excité. Les transitions dipolaires électriques obéissent à la règle de sélection $F'-F = 0, \pm 1$. En spectroscopie laser, pour une raie D donnée, on observera donc 2 groupes de composantes hyperfines (2 pour la raie D_1 , 3 pour la raie D_2) séparées par l'écart hyperfin de l'état fondamental.



A - LA METHODE DE DETECTION OPTIQUE.

1 - INTRODUCTION.

A cause de la faible densité optique du milieu, l'absorption de lumière par un jet atomique bien collimaté est faible. L'épaisseur du milieu atomique peut être augmentée par utilisation de jets multiples parallèles [27]. Mais le plus souvent, en spectroscopie laser, on détecte la fluorescence totale plutôt que l'absorption. Malgré la limitation d'angle solide introduite par l'ouverture de l'optique qui collectionne les photons, la détection de la fluorescence est plus sensible car elle s'effectue sur "fond noir".

Les premières expériences sur le sodium [10 - 12] avaient surtout valeur de test. Plus récemment, des mesures de déplacements isotopiques et de structures hyperfines ont été effectuées sur la raie de résonance de l'ytterbium [28]. La précision accessible à la méthode apparaît mieux dans l'étude de transitions moléculaires, dont la largeur naturelle est très faible ; ainsi, une largeur de raie de 300 KHz a été observée dans l'iode [29]. Dans le cas de transitions peu intenses,

la sensibilité peut être améliorée en faisant passer le jet atomique à l'intérieur de la cavité du laser [30]. La méthode a également été appliquée à l'étude de transitions entre niveaux excités à partir de niveaux de résonance peuplés à l'aide d'un second laser [31, 32] ou de niveaux métastables peuplés par bombardement électronique [33].

Nous avons, pour notre part, souvent employé l'observation de la fluorescence d'un jet atomique comme moyen de contrôle (enregistrement simultané de deux spectres) ou d'asservissement de fréquence (stabilisation au centre de la raie étudiée) dans des expériences à détection non-optique. Cependant, nous décrirons comme exemples d'application spectroscopique de la méthode une expérience concernant une raie de résonance (césium) et une expérience comportant deux étages d'excitation (sodium). Nous présenterons également des profils expérimentaux illustrant dans des cas typiques les effets du pompage hyperfin et de la saturation des transitions.

2 - DISPOSITIF EXPERIMENTAL.

La Fig. 5 donne une description schématique de l'expérience. En réalité, l'appareil de jet atomique (Photo I) est le même que celui que nous avons utilisé pour les expériences de déviation magnétique et il sera décrit en détails dans la Section B. La collimation du jet est déterminée par 2 fentes d'ouverture réglable, distantes de 30 cm. Le rapport de collimation C est en général voisin de 300¹⁾. Comme l'appareil possède un détecteur d'atomes, il est possible de contrôler l'intensité du jet.

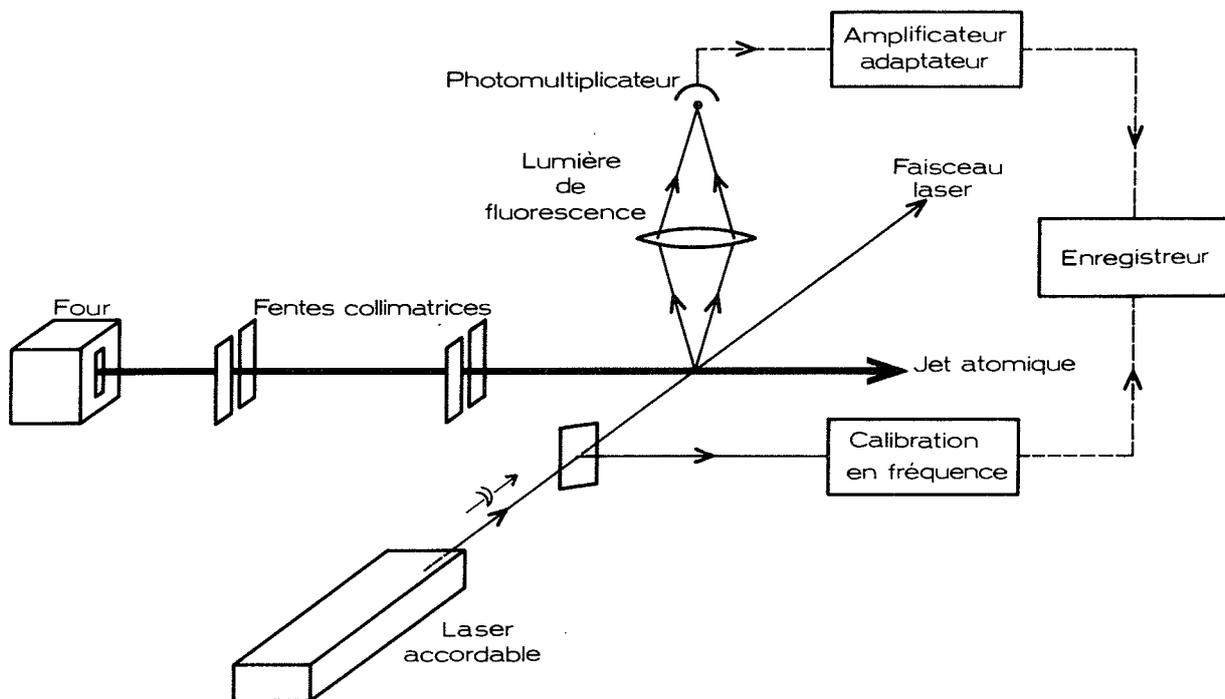


Fig. 5 - Expérience de spectroscopie par jet atomique et laser accordable avec détection de la fluorescence.

1) Pour une vapeur de sodium à la température $T = 573$ K, la largeur Doppler est de 1800 MHz. Une valeur de $C = 300$ suffit pour obtenir un effet Doppler résiduel inférieur à la largeur naturelle et de même ordre que la largeur spectrale du laser à colorant.

Suivant les expériences, le faisceau laser exciteur possède une polarisation linéaire parallèle à l'axe de quantification (π) ou perpendiculaire à l'axe de quantification (σ). Le second cas est obtenu en produisant un champ magnétique faible colinéaire au faisceau. La lumière de fluorescence est observée dans la direction orthogonale au jet et au faisceau laser. Elle est recueillie par une lentille placée à quelques centimètres du jet et focalisée sur la cathode d'un photomultiplicateur. On mesure la fluorescence totale qui ne dépend que de la population de l'état excité, alors que la détection en polarisation linéaire cohérente est sensible à l'alignement de l'état excité (Chap. III). Le signal de fluorescence et le signal d'étalonnage en fréquence sont enregistrés simultanément au cours du balayage de fréquence du laser. Différentes intensités du rayonnement exciteur peuvent être obtenues à l'aide d'un jeu d'atténuateurs étalonnés (Oriol). Il s'agit de lames métallisées dont la densité optique est connue en fonction de la longueur d'onde.

3 - APPLICATIONS SPECTROSCOPIQUES.3-1 STRUCTURE HYPERFINE DU NIVEAU $6^2P_{3/2}$ DU CESIUM.

La Fig. 6 représente des enregistrements des deux groupes de composantes hyperfines de la raie D_2 du césium, issues respectivement des niveaux $F=3$ et $F=4$ de l'état fondamental. Dans cette expérience, la fréquence du laser à GaAs était pilotée par l'intermédiaire d'une cavité externe (Chap. I) à la vitesse de 7 MHz/s environ. Des franges de référence (non présentées sur la figure) étaient fournies par un étalon Fabry-Perot de longueur 1 m. La largeur des raies enregistrées

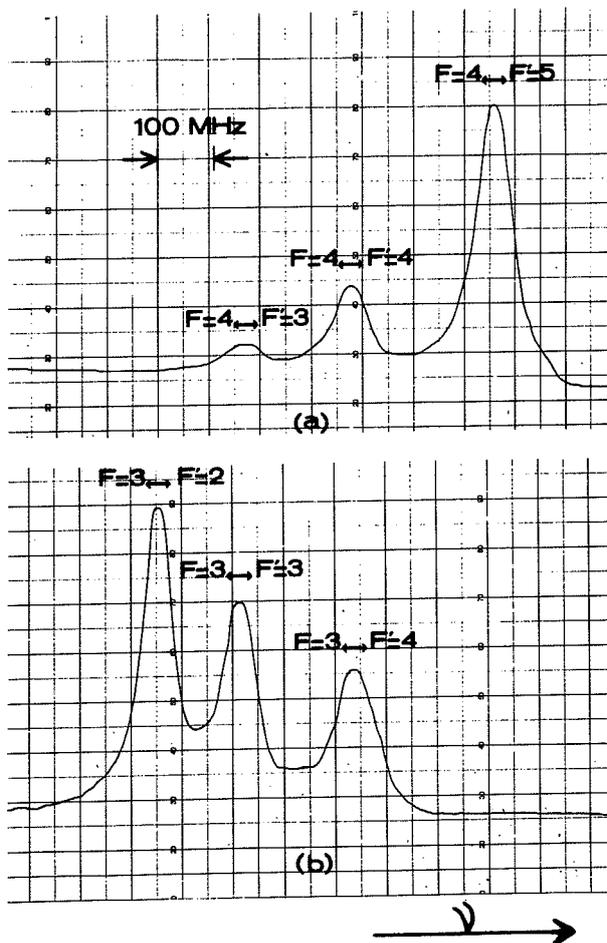


Fig. 6 - Enregistrements de la structure hyperfine de la raie D_2 du césium. (a) Composantes issues du niveau hyperfin $F=4$ de l'état fondamental ; (b) Composantes issues du niveau $F=3$. Vitesse de balayage : 7 MHz/s. Constante de temps : 0,3 s.

(environ 50 MHz) provient essentiellement de la divergence du faisceau lumineux. Celui-ci avait dû être localisé sur le jet atomique afin d'améliorer le rapport signal/bruit. Une moyenne sur une dizaine d'enregistrements nous a fourni pour les distances entre les différentes composantes des valeurs en bon accord avec les écarts hyperfins indiqués sur la Fig. 4 (b), qui proviennent de mesures antérieures [26].

La structure hyperfine de la raie D_2 avait déjà été mise en évidence par spectroscopie optique directe à l'aide d'un laser à GaAs [34]. Un balayage très rapide (~ 5 MHz/ns) par impulsions de courant et une détection par oscilloscope synchronisé étaient employés. Mais cette technique simple pourrait difficilement donner lieu à des mesures, à cause de la non-linéarité du balayage, de la difficulté d'un étalonnage de fréquence précis et de la modification de la forme des raies introduite par les circuits électroniques. Par contre, notre expérience pourrait éventuellement être étendue à la mesure des déplacement isotopiques de la raie D_2 dans les isotopes radioactifs du césium.

3-2 STRUCTURE HYPERFINE DU NIVEAU $5^2S_{1/2}$ DU SODIUM.

Ce niveau de même parité que le niveau fondamental peut être atteint dans une expérience de double-résonance utilisant deux rayonnements optiques. Une expérience du même type nous a permis d'observer l'effet Autler-Townes dans le domaine optique (Chap. IV). On trouvera le schéma du dispositif expérimental dans la Fig. IV-B-2.

Les niveaux utilisés dans l'expérience décrite ici sont représentés sur la Fig. 7. Les atomes étaient portés dans le niveau de résonance à l'aide du laser à colorant SP (laser 1), verrouillé à la composante

hyperfine $3^2S_{1/2}$, $F=2 \leftrightarrow 3^2P_{1/2}$, $F=2$ de la raie D_1 ¹⁾. La fréquence du laser à colorant LAC (laser 2), piloté par un sigmamètre,

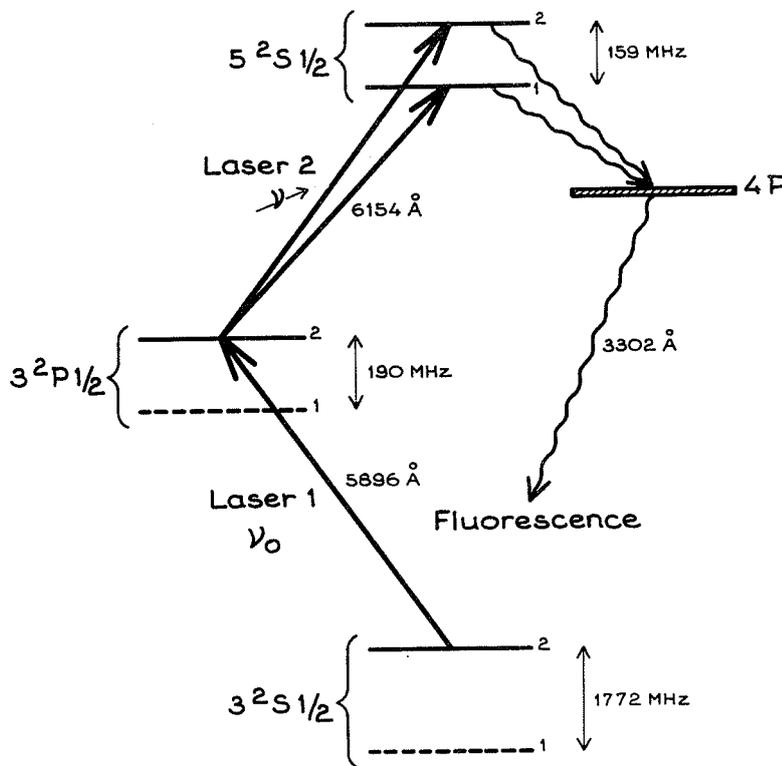


Fig. 7 - Diagramme des niveaux d'énergie utilisés pour l'excitation en deux étages et la détection par fluorescence dans la mesure de la structure hyperfine de l'état $5^2S_{1/2}$ du césium.

était déplacée au voisinage des transitions $3^2P_{1/2}$, $F=2 \leftrightarrow 5^2S_{1/2}$, $F=1, F=2$ (6154 Å), tandis que l'on enregistrerait le signal de fluorescence. La Fig. 8 montre un exemple d'enregistrement du

1) Cette composante diffère de celle qui a été choisie dans l'expérience du Chapitre IV ($3^2S_{1/2}$, $F=2 \leftrightarrow 3^2P_{3/2}$, $F=3$), qui ne permettait pas l'enregistrement de la structure du niveau 5S. Par ailleurs, la puissance du laser 1 était maintenue à un niveau bien inférieur à celui nécessaire à l'observation de l'effet Stark dynamique.

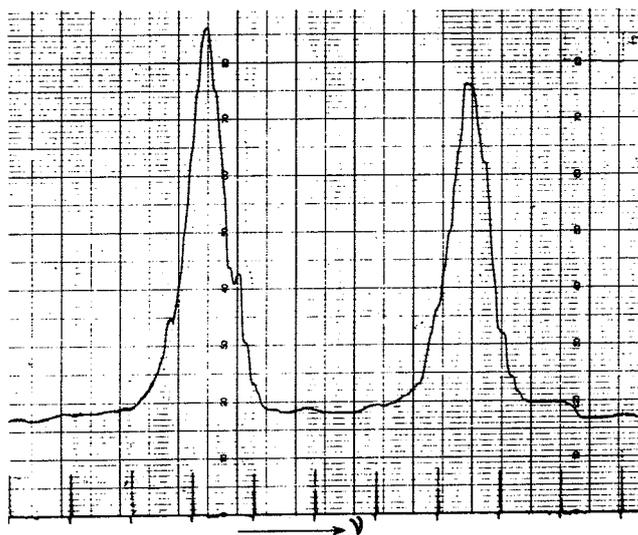


Fig. 8 - Enregistrement de la structure hyperfine de l'état $5 \ ^2S_{1/2}$ du césium. L'étalonnage en fréquence est fourni par des impulsions enregistrées à des intervalles de 37,5 MHz correspondant à 10 "pas" du balayage du sigmamètre. Vitesse de balayage : 6 MHz/s. Constante de temps : 0,3 s.

spectre observé. L'échelle des fréquences est fournie directement par l'électronique qui commande la fréquence du sigmamètre. La largeur de raie observée est de 25 MHz. La valeur de l'écart hyperfin déduite de nos enregistrements confirme la mesure faite antérieurement au Laboratoire Aimé Cotton (159 ± 6 MHz) dans une expérience du même type [31]. Toutefois, la présente expérience a apporté plusieurs améliorations qui doivent permettre de réduire de moitié l'incertitude de cette mesure.

Les améliorations par rapport à l'expérience antérieure consistent en une meilleure calibration en fréquence (le marquage est réalisé à intervalles 3 fois plus rapprochés) et surtout en une nette augmentation du rapport signal/bruit. Cette dernière résulte de plusieurs facteurs : l'asservissement du laser 1 sur la transition qui constitue le premier étage de l'excitation (réduction des instabilités du signal), la plus forte intensité de ce laser (augmentation de la population du niveau intermédiaire, donc du signal), l'utilisation d'un filtre permettant de détecter sélectivement l'émission spontanée $5S \rightarrow 4P$, à une longueur d'onde (3302 \AA) très différente de celles des deux lasers (élimination

de la lumière parasite). Par ailleurs, les intensités des deux raies (théoriquement égales) sont beaucoup mieux respectées que précédemment.

D'autres mesures de la structure hyperfine du niveau $5^2S_{1/2}$ ont été effectuées récemment à l'aide de lasers à colorant, par spectroscopie à deux photons [35, 36] ou résonance magnétique après excitation en deux étages [37].

4 - EFFETS DE PUISSANCE.

On peut classer les transitions hyperfines $F_0 \longleftrightarrow F'_0$ observées dans les raies de résonance des alcalins en deux types, suivant que les atomes excités par le rayonnement laser ne peuvent retomber par émission spontanée que dans le niveau initial F_0 ou peuvent retomber dans le niveau F_1 différent de F_0 (pompage optique hyperfin). Ces deux types de transitions ont un comportement bien différent dès que la puissance de rayonnement n'est pas très faible. Nous allons illustrer ces différences à l'aide d'exemples choisis dans les raies de résonance du sodium : la transition $F=2 \longleftrightarrow F'=3$ de la raie D_2 pour le système "fermé" et les transitions $F=2 \longleftrightarrow F'=1, 2$ de la raie D_1 pour le système "ouvert". Auparavant, nous allons les justifier à partir d'un modèle théorique simple. Ce dernier nous permettra aussi d'établir des ordres de grandeur relatifs à l'interaction jet atomique - faisceau laser.

4-1 MODELE DE L'ATOME à 2 NIVEAUX.4-1-1 Système "fermé".

Nous considérons un jet atomique illuminé à angle droit par un rayonnement laser monochromatique quasi-résonnant. Le système atomique

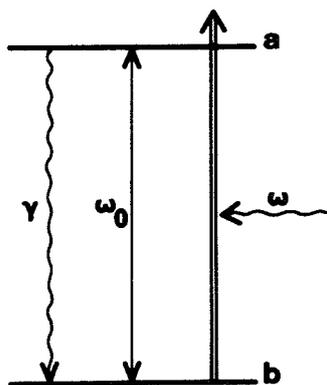


Fig. 9.- Le système "fermé"

(Fig. 9) se compose de 2 niveaux a et b séparés par l'énergie $E_a - E_b = \hbar \omega_0$. Le niveau b est le niveau fondamental ; le niveau a un niveau excité de durée de vie $\tau = \gamma^{-1}$ (γ est le taux d'émission spontanée de b vers a). Le rayonnement est représenté par l'onde électromagnétique $\vec{E} = \vec{e} E_0 \cos \omega t$. L'ensemble des N atomes présents dans la zone illuminée est décrit par une matrice densité σ . Les éléments de matrice diagonaux σ_{aa} et σ_{bb} représentent les populations respectives des niveaux a et b ($\sigma_{aa} + \sigma_{bb} = N$). La partie réelle des éléments non diagonaux ($\sigma_{ab} = \sigma_{ba}^*$) est proportionnelle au dipole macroscopique induit par le rayonnement dans le milieu atomique. L'évolution de σ est décrite par les "équations de Bloch optiques" du système à 2 niveaux¹⁾. Nous nous plaçons dans l'approximation du champ tournant (qui suppose $\omega \sim \omega_0$) et nous posons $\sigma_{ab} = \rho_{ab} e^{-i\omega t}$. Ces équations constituent alors un système différentiel à coefficients constants :

1) Nous généraliserons les "équations de Bloch optiques" au Chapitre III pour tenir compte des niveaux Zeeman des états fondamental et excité. Mais ces équations plus complètes n'apporteraient rien de fondamental à la compréhension des phénomènes qui nous intéressent ici.

$$\dot{\sigma}_{aa} = -\gamma \sigma_{aa} - i \frac{\Omega}{2} (\rho_{ab} - \rho_{ba}) \quad , \quad (2a)$$

$$\dot{\sigma}_{bb} = \gamma \sigma_{aa} + i \frac{\Omega}{2} (\rho_{ab} - \rho_{ba}) \quad , \quad (2b)$$

$$\dot{\rho}_{ab} = -\frac{\gamma}{2} \rho_{ab} + i(\omega - \omega_0) \rho_{ab} - i \frac{\Omega}{2} (\sigma_{aa} - \sigma_{bb}) \quad , \quad (2c)$$

$$\dot{\rho}_{ba} = \dot{\rho}_{ab}^* \quad . \quad (2d)$$

La paramètre Ω est la fréquence de mutation de Rabi définie par

$$\Omega = \frac{d E_0}{\hbar} \quad , \quad (3)$$

où d est d'élément de matrice de la projection du dipole atomique \vec{D} sur le champ :

$$d = \langle a | \vec{D} \cdot \vec{e} | b \rangle \quad (4)$$

(on choisit les phases relatives de $|a\rangle$ et $|b\rangle$ pour que d soit réel). En régime stationnaire ($\dot{\sigma} = 0$), le système d'équations (2) devient un système algébrique admettant pour solution :

$$\rho_{ab} = \frac{N}{2} \frac{\Omega (\omega_0 - \omega + i \frac{\gamma}{2})}{(\omega - \omega_0)^2 + \frac{\gamma^2}{4} + \frac{\Omega^2}{2}} \quad , \quad (5)$$

$$\sigma_{aa} = \frac{N}{2} \frac{\frac{\Omega^2}{2}}{(\omega - \omega_0)^2 + \frac{\gamma^2}{4} + \frac{\Omega^2}{2}} \quad . \quad (6)$$

En fonction du paramètre de saturation de la transition ¹⁾

$$\alpha = \frac{2\Omega^2}{\gamma} \quad , \quad (7)$$

la population du niveau excité (6) s'écrit encore :

¹⁾ Le facteur 2 contenu dans α vient de ce que, dans notre système atomique simple, les constantes de relaxation longitudinale et transversale sont respectivement γ et $\gamma/2$.

$$\sigma_{aa} = \frac{N}{2} \frac{\frac{\gamma^2}{4} \alpha}{(\omega - \omega_0)^2 + \frac{\gamma^2}{4} (1 + \alpha)} \quad (8)$$

L'équation (8) montre que la population du niveau excité dépend de la fréquence ω du laser suivant une courbe de Lorentz dont la hauteur est donnée par

$$N_a = \sigma_{aa} (\omega = \omega_0) = \frac{N}{2} \frac{\alpha}{1 + \alpha} \quad (9)$$

et la largeur à mi-hauteur par

$$\gamma' = \gamma (1 + \alpha)^{\frac{1}{2}} \quad (10)$$

La variation de N_a avec α est représentée sur la Fig. 10. Pour α petit, N_a dépend linéairement de α . Pour α très grand, la moitié des atomes se trouve dans l'état excité. La valeur intermédiaire $\alpha = 1$ est souvent choisie pour caractériser le début de la saturation. Le carré de γ' croît linéairement avec α . Pour $\alpha = 0$, γ' est égale à la largeur naturelle $\gamma = \tau^{-1}$.

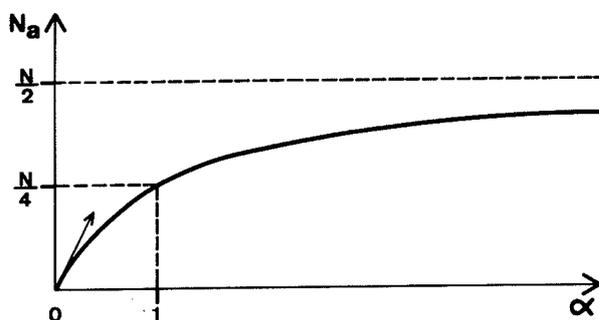


Fig. 10 - Population à résonance N_a du niveau excité en fonction du paramètre de saturation α .

Le nombre moyen de processus d'émission spontanée par atome et par unité de temps s'écrit :

$$\frac{n_0}{\tau} = \frac{N_a/N}{\tau} = \frac{\gamma}{2} \frac{\alpha}{1 + \alpha} \quad (11)$$

Pendant une interaction de durée T très grande devant τ (condition pour que le régime stationnaire puisse s'établir), le nombre moyen de processus d'émission spontanée est $\bar{n} = \bar{n}_0 T$. La valeur de α telle que tous les atomes soient excités une fois en moyenne ($\bar{n} = 1$) est $\alpha \approx 2\tau/T$.

Notons que la composante anti-résonnante du champ oscillant linéaire a pour effet de déplacer le centre de la résonance dans l'expression (8). Il s'agit du déplacement de Bloch-Siegert [38] :

$$\delta\omega_{BS} = \frac{\Omega^2}{8\omega_0} \quad . \quad (12)$$

Ordres de grandeur.

Prenons l'exemple d'un jet d'atomes de sodium de vitesse moyenne $\bar{v} = 800$ m/s, illuminé par un faisceau laser de diamètre $l = 2$ mm. Le temps de transit des atomes à travers le faisceau lumineux est alors de $T = l/\bar{v} \approx 2,5 \times 10^{-6}$ s. La durée de vie du niveau de résonance est $\tau = 1,6 \times 10^{-8}$ s. D'où $T/\tau \approx 150$. La valeur de α correspondant à $\bar{n} = 1$ est donc $\alpha \sim 10^{-2}$.

La relation entre le paramètre de saturation α et la puissance P par unité de section transversale du faisceau lumineux est donnée en unités c.g.s. par

$$\alpha = \frac{2d^2 E_0^2}{\hbar^2 \gamma^2} = \frac{16 \pi d^2}{\hbar^2 c \gamma^2} P \quad . \quad (13)$$

Le laser à colorant monomode permet d'atteindre $\alpha \sim 100$. Même dans ces conditions, le déplacement de Bloch-Siegert, tel que $\delta\omega_{BS}/\omega_0 \approx 10^{-16} \alpha$, est trop faible pour être observable. Pour observer un déplacement de la fréquence des raies d'absorption du système atomique en présence d'un

champ laser intense quasi-résonnant, il faut sonder le système à l'aide d'un second champ de faible intensité (Chap. IV).

4-1-2 Systeme "ouvert".

Nous supposons maintenant que l'état fondamental du système atomique comporte 2 niveaux b et c (Fig. 11). Le rayonnement est toujours quasi-résonnant vis-à-vis de la transition $a \leftrightarrow b$.

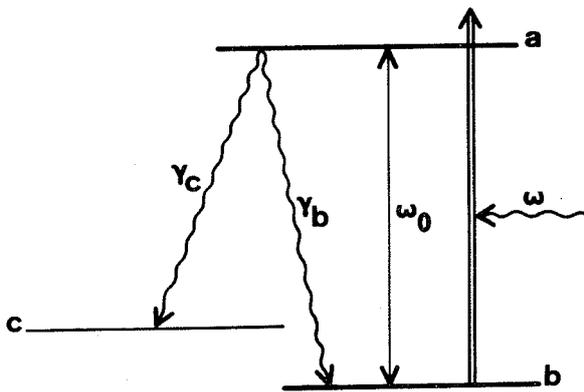


Fig. 11 - Le système "ouvert"

On suppose négligeable le couplage qu'il introduit entre les niveaux a et c ($|E_c - E_b| \gg \pi \Omega$). Les atomes excités dans le niveau a peuvent retomber par émission spontanée dans les niveaux b et c, avec des taux respectifs γ_b et γ_c ($\gamma_b + \gamma_c = \gamma$). L'évolution du système est décrite par les équations (2') obtenues en changeant γ en γ_b

dans (2b) et en ajoutant l'équation :

$$\dot{\sigma}_{cc} = \gamma_c \sigma_{aa} \quad (2'e)$$

On déduit immédiatement des équations (2') les populations en régime stationnaire : $\sigma_{aa}(\infty) = \sigma_{bb}(\infty) = 0$, $\sigma_{cc}(\infty) = N$. Tous les atomes se sont accumulés dans le niveau c par pompage optique. La solution correspondant au régime transitoire est obtenue en résolvant le système différentiel (2'). Elle prend la forme :

$$\sigma_{aa}(t) = \sum_{q=1}^4 \xi_q e^{\lambda_q t} \quad (15)$$

où les λ_q sont les valeurs propres de la matrice associée au système

(2') et les ζ_q sont imposés par les conditions initiales : $\rho_{ab}(0) = \sigma_{aa}(0) = \sigma_{cc}(0) = 0$, $\sigma_{bb}(0) = 1$. Nous ne donnerons ici que l'intégrale de l'expression (15) :

$$\int_0^{\infty} \sigma_{aa}(t) dt = \frac{N}{2} \frac{1}{\gamma_b} \frac{\frac{\Omega^2}{2}}{(\omega - \omega_0)^2 + \frac{\gamma^2}{4} + (1 + \frac{\gamma}{\gamma_b}) \frac{\Omega^2}{4}} \quad (16)$$

4-1-3 Le signal de fluorescence.

Le signal fourni par un photomultiplicateur collectant la lumière de fluorescence issue de l'ensemble de la zone du jet atomique illuminée par le faisceau laser est proportionnel à :

$$s(\omega) = \int_0^T \sigma_{aa}(t, \omega) dt \quad (17)$$

Cette expression suppose que les atomes "voient" la même fréquence ω pendant le temps de transit T , c'est-à-dire que le balayage du laser soit suffisamment lent pour que $d\omega/dt \ll \gamma/T$ (ce qui est toujours réalisé dans nos expériences). Puisque $T \gg \tau$, on peut donner les expressions approchées de (17) :

$$s_{\text{fer}}(\omega) \approx T \sigma_{aa}(\infty, \omega) \quad (18)$$

pour un système fermé vis-à-vis de l'émission spontanée, et

$$s_{\text{ouv}}(\omega) \approx \int_0^{\infty} \sigma_{aa}(t, \omega) dt \quad (19)$$

pour un système soumis au pompage optique. Dans les deux cas, en l'absence d'effet Doppler, la forme de raie est lorentzienne. Mais la comparaison des équations (6) et (16) indique que le pompage optique accroît l'élargissement radiatif, la largeur de raie devenant telle que :

$$\gamma'^2 = \gamma^2 \left[1 + \frac{1 + \gamma/\gamma_b}{2} \alpha \right] \quad (20)$$

Comparons également les intensités des raies dans chacun des deux cas. On trouve à résonance :

$$s_{\text{fer}}(\omega = \omega_0) = T \frac{N}{2} \frac{\alpha}{1 + \alpha} \quad (21)$$

pour le système fermé, et :

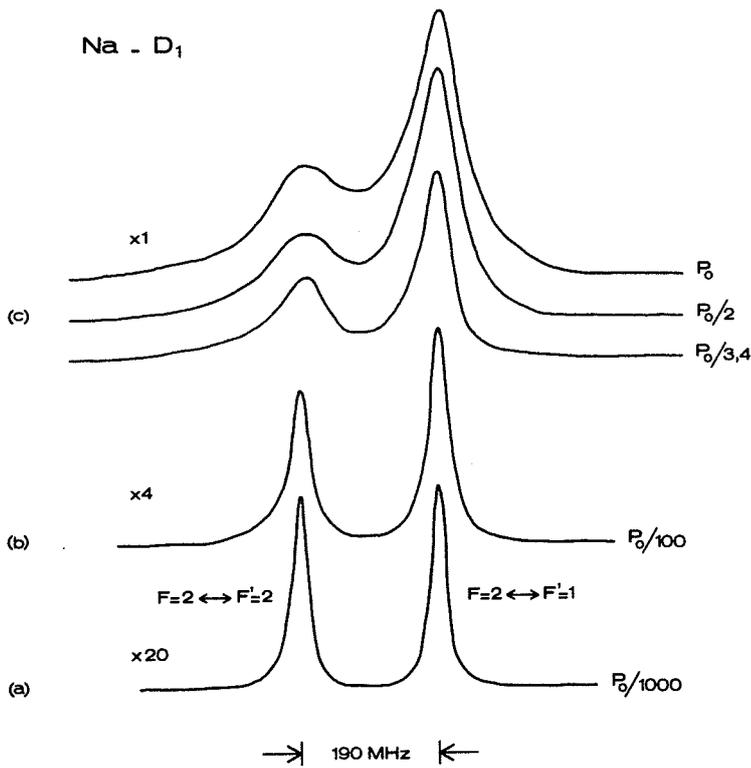
$$s_{\text{ouv}}(\omega = \omega_0) = \frac{1}{\gamma_b} \frac{N}{2} \frac{\alpha}{1 + \frac{\gamma/\gamma_b}{2}} \alpha \quad (22)$$

pour le système ouvert. A cause du pompage optique, le signal est diminué par un facteur de l'ordre de $T\gamma_b > T/\tau$.

4-2 MODIFICATION DES INTENSITES PAR POMPAGE HYPERFIN.

Le pompage optique hyperfin résulte de la faible largeur spectrale du laser par rapport à la structure hyperfine de l'état fondamental des atomes alcalins. Lorsque des atomes ayant été excités à partir du niveau hyperfin F_0 passent par émission spontanée dans le niveau F_1 , ils ne peuvent plus être excités une seconde fois. A partir d'une intensité lumineuse telle que tous les atomes ont été excités une fois en moyenne ($\alpha \sim 10^{-2}$), le pompage optique hyperfin entraîne donc une modification des intensités relatives des raies.

Les Fig. 12 et 13 reproduisent respectivement des enregistrements de la raie D_1 et de la raie D_2 du sodium, obtenus pour la même puissance par unité de surface du rayonnement P_0 et certaines fractions de P_0 . La puissance du faisceau laser était de 20 mW et son diamètre voisin de 2 mm. Donc, $P_0 \approx 0,65 \text{ W/cm}^2$.



← Fig. 12

Fig. 13

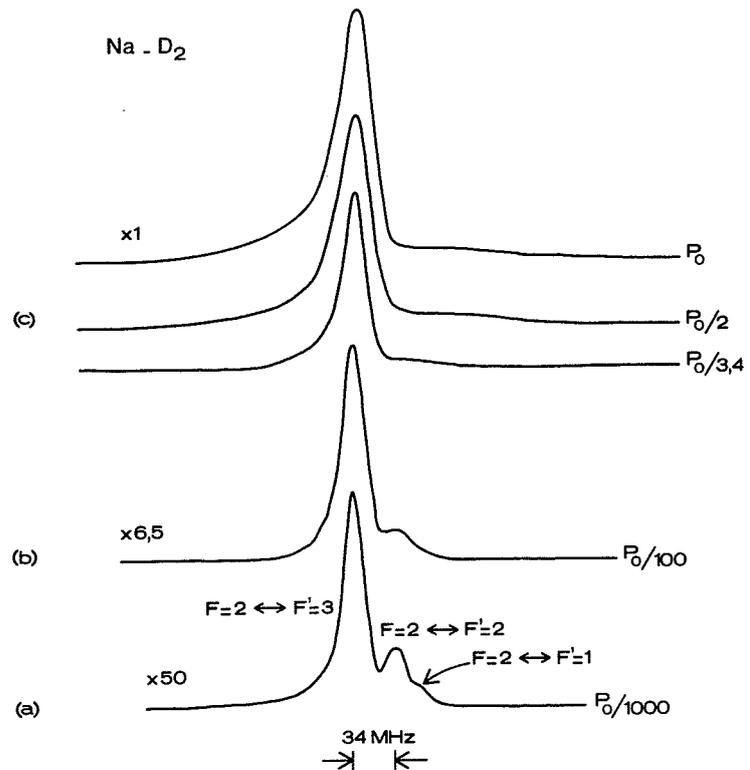


Fig. 12, 13 -
Profils expérimentaux
des groupes des compo-
santes issues de $F=2$
de la raie D₁ (Fig.12)
et de la raie D₂ (Fig.
13) du sodium, pour

diverses puissances par unité de surface du faisceau du laser à colorant.

La valeur de P_0 est identique pour les deux figures ($P_0 \approx 0,65 \text{ W/cm}^2$).
Le même facteur numérique $\times 1$ représente un signal 5 fois plus important
dans la Fig. 13 que dans la Fig. 12.

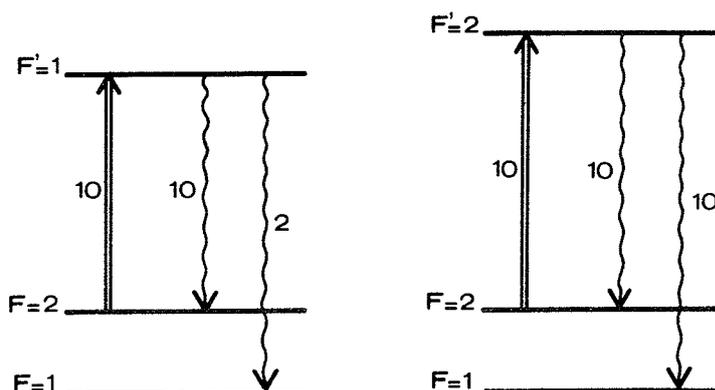


Fig. 14 - Probabilités de transition relatives et rapports de branchement de l'émission spontanée dans le groupe de composantes hyperfines de la raie D_1 du sodium issues de $F=2$.

Considérons d'abord l'exemple du groupe des deux composantes $F=2 \longleftrightarrow F'=1, 2$ de la raie D_1 du sodium. Ces deux raies possèdent la même probabilité de transition. Mais sur 6 atomes excités, 5 atomes retournent dans le niveau $F=2$ pour la transition $F=2 \longleftrightarrow F'=1$ contre seulement 3 atomes pour la transition $F=2 \longleftrightarrow F'=2$ (Fig. 43). Cela explique pourquoi, en détection par fluorescence, la raie $F=2 \longleftrightarrow F'=1$ apparaît généralement plus intense que la raie $F=2 \longleftrightarrow F'=2$ (Fig. 12-a). Lorsqu'on augmente la puissance lumineuse, elle est rapidement suffisante pour que le niveau $F=2$ soit vidé complètement au cours du temps de transit ($T \sim 10^{-5}$ s) des atomes à travers le faisceau lumineux. Au-delà, le rapport des intensités des deux raies devient approximativement constant (Fig. 12-b). La lumière est émise uniquement pendant un régime transitoire s'étendant sur une période ($\sim 10^{-7}$ s) de quelques durées de vie de l'état excité. Dans une simple observation à l'oeil, la fluorescence du jet atomique apparaît limitée à l'entrée de la zone d'interaction avec le faisceau laser.

Dans le cas de la raie D_2 , suivons également l'évolution des composantes hyperfines issues du niveau $F=2$. Puisque l'émission

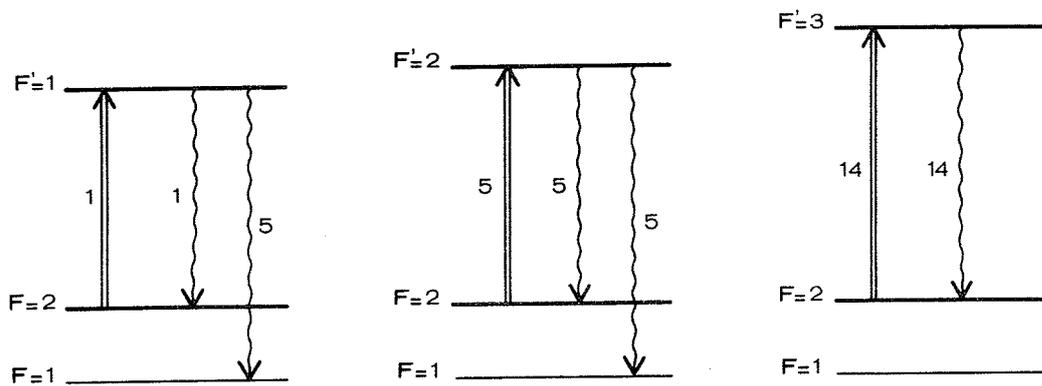


Fig. 15 - Probabilités de transition relatives et rapports de branchement de l'émission spontanée dans le groupe de composantes hyperfines de la raie D_2 du sodium issues de $F=2$ (Les nombres indiqués sont donnés avec le même facteur multiplicatif que ceux de la Figure 14).

spontanée $F'=3 \rightarrow F=1$ est interdite, la composante extrême $F=2 \leftrightarrow F'=3$ n'est pas soumise au pompage hyperfin (Fig. 15). Dans le spectre enregistré, elle se trouve donc rehaussée par rapport aux composantes voisines (Fig. 13-a). Ici aussi, la modification des intensités relatives intervient très rapidement : si l'on représente, avec une unité arbitraire, les probabilités relatives d'absorption d'un photon par les chiffres 100 - 35,7 - 7,1 pour les transitions respectives $F=2 \leftrightarrow F'=3$, 2, 1, les probabilités relatives d'absorption d'un second photon deviennent 100 - 17,8 - 1,2. Lorsqu'on augmente la puissance lumineuse, les deux composantes adjacentes tendent à disparaître devant la composante principale $F=2 \leftrightarrow F'=3$ (Fig. 13 -b). Lorsque le laser est accordé à la transition $F=2 \leftrightarrow F'=3$, la lumière de fluorescence est émise en régime stationnaire. A l'oeil, le jet apparaît illuminé sur toute la longueur de la région d'interaction.

Notons que le pompage hyperfin se manifeste également dans les enregistrements de la raie D_2 du césium (Fig. 6). Les intensités

relatives observées ne sont pas dans le rapport des probabilités de transition. Les composantes extrêmes de chaque groupe $F=4 \longleftrightarrow F'=5$ et $F=3 \longleftrightarrow F'=2$ sont rehaussées par rapport aux composantes voisines.

4-3 ELARGISSEMENT RADIATIF.

Au-delà d'une certaine intensité lumineuse, le phénomène important n'est plus la modification des intensités relatives, mais l'élargissement des raies par saturation. Pour fixer les idées, on peut placer ce seuil à la valeur $\alpha = 1$ du paramètre de saturation.

Nous avons observé un élargissement radiatif important des composantes de la raie D_1 . Les largeurs de la composante la plus intense $F=2 \longleftrightarrow F'=1$ relevées sur les profils expérimentaux de la Fig. 12-c sont voisines de 80 MHz, 55 MHz, 45 MHz pour les puissances respectives P_0 , $P_0/2$, $P_0/3,4$. Ces valeurs sont en très bon accord avec la linéarité de la fonction $\gamma'^2 = f(\alpha)$. Mais il ne s'agit là que d'une vérification assez grossière, puisqu'elle ne tient pas compte des contributions à la largeur de raie de l'effet Doppler résiduel et de la largeur spectrale du laser. La largeur $\gamma' \approx 80$ MHz observée à la puissance maximale P_0 correspond à un coefficient de saturation $\alpha \approx 60$.

Dans les enregistrements à forte puissance de la raie D_2 (Fig. 13-c), la largeur de la raie $F=2 \longleftrightarrow F'=3$ est inférieure à la largeur observée dans les enregistrements correspondants de la raie D_1 (Fig. 12-c). Cela pourrait s'expliquer par l'absence d'un pompage optique favorisant l'élargissement radiatif. Mais on remarque par ailleurs une forte dissymétrie du profil de la raie (voir aussi [12, 39]). En réalité, les transitions du groupe ne peuvent plus être considérées comme indépendantes. Le rayonnement produit un "mélange" des niveaux

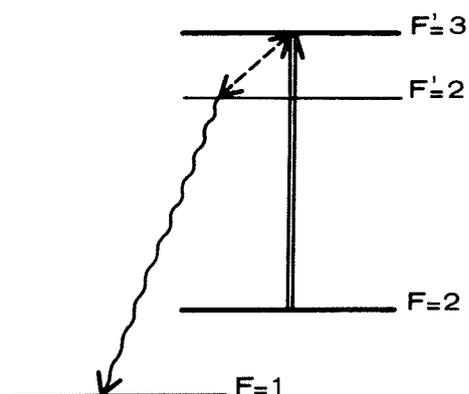


Fig. 16 - Mécanisme responsable du pompage optique dans le "système à 2 niveaux" ($F=2$, $F'=3$) de la raie D_2 du sodium.

excités $F'=3$ et $F'=2$ dès que la fréquence de Rabi relative à la transition $F=2 \longleftrightarrow F'=3$ devient de l'ordre de leur distance, soit pour $\alpha \sim 50$ ($\Omega = 50$ MHz). L'émission spontanée vers le niveau de l'état fondamental $F=1$ est alors autorisée et crée une "fuite" dans le système fermé à 2 niveaux $F=2$ et $F'=3$ (Fig. 16). La forme de la raie est surtout modifiée du côté basse-fréquence, la plus proche des raies adjacentes. Ce phénomène du pompage optique consécutif au mélange des niveaux excités est également la principale cause de la dissymétrie observée dans les études d'effet Stark dynamique utilisant le même système atomique : distribution spectrale de la lumière de fluorescence émise sur la transition $F=2 \longleftrightarrow F'=3$ elle-même [40, 39] ou spectre d'absorption obtenu en sondant une transition vers un niveau supérieur (Chap. IV). Il est cependant possible de réaliser rigoureusement un système à 2 niveaux $F=2, m=2 \longleftrightarrow F'=3, m'=3$ en employant un rayonnement de polarisation circulaire σ_+ [41, 42].



B - LA METHODE DE DEVIATION MAGNETIQUE.

1 - INTRODUCTION.

Des atomes placés dans un champ magnétique \vec{H} non uniforme subissent l'action d'une force :

$$\vec{F} = \mu_z \vec{\nabla} H \quad , \quad (23)$$

où μ_z est la projection de leur moment magnétique sur la direction de \vec{H} . En 1924, l'expérience de Stern et Gerlach [43] de déviation d'un jet d'atomes par un gradient de champ magnétique a mis en évidence la quantification spatiale du moment angulaire. La méthode dérivée de cette expérience, puis la variante dite de "moment nul" [44], moins sensible à la distribution thermique des vitesses, ont permis la mesure d'un grand nombre de spins nucléaires et de moments magnétiques. Toutefois, c'est l'introduction en 1938 de la méthode résonnante par Rabi et ses collaborateurs [45] qui a marqué une étape décisive.

Dans la méthode de Rabi, le jet atomique traverse successivement deux régions A et B de champ magnétique non uniforme séparées par

une région C de champ uniforme (où aucune déviation ne se produit). Lorsque les gradients des champs A et B sont de sens opposé et ajustés à une valeur déterminée, les atomes voient leur trajectoire courbée dans l'aimant A (aimant de déviation) et redressée vers le détecteur dans l'aimant B (aimant de refocalisation), indépendamment de leur vitesse. Si l'on induit dans la région C, à l'aide d'un champ magnétique oscillant superposé au champ statique, une transition provoquant le renversement du moment magnétique résultant d'une partie des atomes, la déviation de ces derniers dans l'aimant B est inversée. On observe à résonance une diminution de l'intensité du jet au niveau du détecteur : la méthode est dite de "flop-out". Une variante importante a été introduite par Zacharias en 1942 [46] : il s'agit de la méthode de "flop-in" qui donne lieu à une détection sur fond noir. Ici, les gradients de champ magnétique sont de même sens et les atomes n'atteignent le détecteur que s'ils ont subi dans la région C un renversement de moment magnétique (Fig. 17-a). Dans les deux cas, les aimants A et B jouent respectivement le rôle de polariseur et d'analyseur de l'état magnétique des atomes ¹⁾.

Dans les expériences les plus classiques, le changement d'état magnétique est obtenu par résonance magnétique dans l'état fondamental ou un état métastable. Cette technique a d'abord été appliquée à la mesure de moments magnétiques nucléaires puis, plus généralement, à la spectroscopie des radiofréquences des atomes et des molécules. La méthode de Rabi a ensuite été étendue à la résonance électrique et à la déviation électrique. Sous des formes diverses, elle a permis depuis presque 40 ans la mesure précise d'un nombre impressionnant de paramètres

1) Dans une modification suggérée par Kastler [47], les champs magnétiques non uniformes sont remplacés par des faisceaux lumineux polarisés circulairement. Au lieu d'être effectuées par sélection matérielle des atomes, la création d'une différence de population (région A) et la détection de la résonance magnétique (région B) sont réalisées par pompage optique. Cette technique a été utilisée avec un rayonnement de pompage fourni par une source ordinaire [48] et plus récemment par un laser à colorant [49, 50].

variés et fourni des résultats aussi importants que le "Lamb-shift" dans l'hydrogène, le moment magnétique de l'électron et du neutron ou le moment quadrupolaire électrique du deutéron (pour plus de détails, voir les références [15, 16]).

En 1952, Rabi a proposé de généraliser les expériences aux niveaux excités [51], en soumettant les atomes dans la région C à l'action simultanée de la lumière de résonance et d'un champ de radiofréquence¹⁾, comme dans la méthode (à détection optique) de double-résonance [55]. Il s'agit encore ici d'une technique de spectroscopie hertzienne, puisque la lumière ne sert qu'à préparer l'état excité. Elle a été appliquée à l'étude de la structure hyperfine du niveau de résonance du sodium [56] et d'autres atomes alcalins [57, 58]. Dans la modification introduite par Marrus et ses collaborateurs [22 - 25], les atomes interagissent uniquement avec la lumière de résonance et les résonances sont obtenues en déplaçant les niveaux atomiques à l'aide d'un champ électrique statique. Il s'agit donc là d'une technique de spectroscopie optique. Elle a permis en particulier la mesure de déplacements isotopiques de la raie D_1 dans les isotopes radioactifs du césium [59]. Nous avons décrit, en introduction au Chapitre II, une expérience de ce type et nous avons montré ses limites : résolution moyenne, signal faible. Comme nous l'avons indiqué, ces inconvénients disparaissent avec l'utilisation d'un laser monomode accordable. Notre méthode constitue ainsi une nouvelle étape qui combine les avantages de la spectroscopie optique à haute résolution par jet atomique et laser accordable et de la technique de détection de Rabi.

1) Une variante utilisant un aimant focalisateur unique a été proposée par Bucka [52] et appliquée à l'étude du niveau de résonance du potassium [53]. Comme nous l'avons fait vis-à-vis de la méthode de Rabi, Duong et Vialle ont adapté la méthode de Bucka au cas d'un rayonnement monochromatique accordable [54]. C'est cette méthode qui a été employée pour l'étude des isotopes radioactifs du sodium [14].

2 - DETECTION DE LA RESONANCE OPTIQUE.

Nos expériences ont porté sur des atomes alcalins et utilisé un montage "flop-in". C'est à l'intérieur de ce cadre que nous allons exposer leur principe. Nous noterons m le nombre quantique magnétique associé au moment angulaire résultant F dans l'état fondamental ; les notations F', m' seront réservées à l'état excité. Nous appellerons (Fm) , par continuité, les niveaux de l'état fondamental en présence d'un champ magnétique H , même lorsque F n'est plus un bon nombre quantique. L'énergie $W(H)$ de ces niveaux est donnée dans les atomes alcalins, de moment angulaire électronique $J=1/2$, par la formule de Breit-Rabi. La Fig. 17-b montre l'exemple du diagramme des niveaux d'énergie du sodium (de spin nucléaire $I=3/2$). Pour un niveau (Fm) donné, on peut définir dans un champ magnétique H donné un moment magnétique effectif

$$\mu_{\text{eff}} = - \frac{\partial W}{\partial H} \quad (24)$$

Dans un montage "flop-in", la condition de refocalisation des atomes est le transfert dans la région C d'un état (Fm) ayant un certain moment magnétique effectif à un état (Fm) ayant un moment effectif de signe opposé. Généralement, les champs magnétiques A et B sont des "champs forts" ¹⁾. Les transferts efficaces sont alors ceux qui s'effectuent depuis un état (Fm) appartenant au groupe $m_J = 1/2$ en champ fort ($\mu_{\text{eff}} \approx -\mu_B$) vers un état (Fm) appartenant au groupe $m_J = -1/2$ ($\mu_{\text{eff}} \approx \mu_B$), ou réciproquement. Nous avons noté (α) et (β) sur la Fig. 17-b deux exemples de transitions typiques en résonance magnétique en champ faible, qui satisfont à la condition de refocalisation. La transition de basse-fréquence ($\Delta F = 0$) entre les

¹⁾ Le domaine des champs forts est défini par $x \gg 1$ à partir du paramètre classique $x \approx -(2\mu_B H) / \Delta v_g$, où Δv_g est l'écart de structure hyperfine de l'état fondamental et μ_B le magnéton de Bohr. La valeur $x=1$ correspond à $H = 630$ G pour Na et $H = 3300$ G pour Cs.

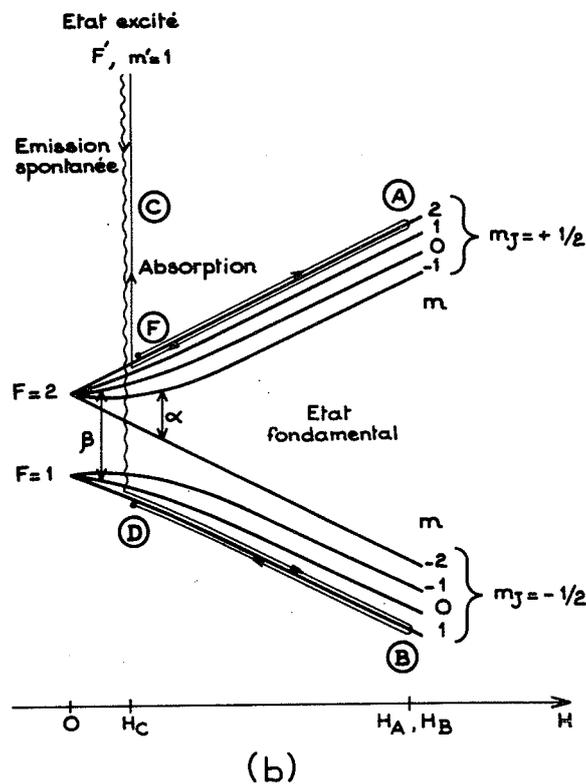
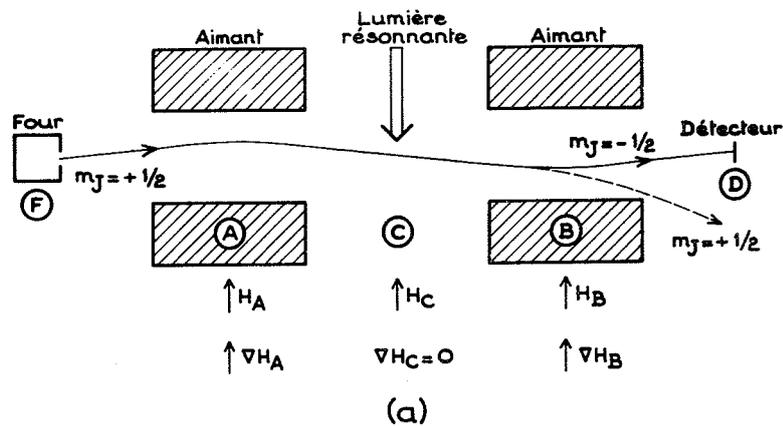


Fig. 17 - (a) Détection de la résonance optique de type Rabi, en montage "flop-in". Trajectoire d'un atome effectuant dans la région C un transfert $m_J = 1/2 \rightarrow m_J = -1/2$. (b) Trajet suivi simultanément par le même atome dans le diagramme d'énergie. On a représenté ici un exemple (supposant une polarisation σ du rayonnement) parmi les divers "chemins absorption-émission spontanée" qui permettent le transfert $m_J = 1/2 \rightarrow m_J = -1/2$. Le passage entre une région de champ fort (aimants défecteurs) et une région de champ faible est supposé adiabatique.

sous-niveaux Zeeman $m = -(I + 1/2)$ et $m = -(I + 1/2) + 1$ de l'état $F = I + 1/2$ a servi à la détermination du spin nucléaire d'un grand nombre d'isotopes alcalins radioactifs. La transition de haute fréquence ($\Delta F = 1$) entre les deux sous-niveaux $m=0$, dont la fréquence ne dépend que quadratiquement du champ magnétique, est utilisée dans les horloges atomiques à jet de césium.

En résonance optique, les atomes qui contribuent au signal sont ceux qui sont excités à partir d'un état (F_m) du groupe $m_J = 1/2$ et retombent après émission spontanée dans un état (F_m) du groupe $m_J = -1/2$, ou réciproquement (Fig. 17). Ce n'est pas la transition induite par le rayonnement qui provoque directement le changement d'état magnétique, mais l'ensemble du processus d'absorption et du processus d'émission spontanée qui le suit. Notre méthode s'apparente à la fois à la méthode originale de Rabi [45], puisque nous accordons la fréquence d'un rayonnement monochromatique aux transitions de Bohr atomiques, et à la méthode de Rabi généralisée aux niveaux excités [51], puisque nous détectons indirectement la résonance via l'émission spontanée.

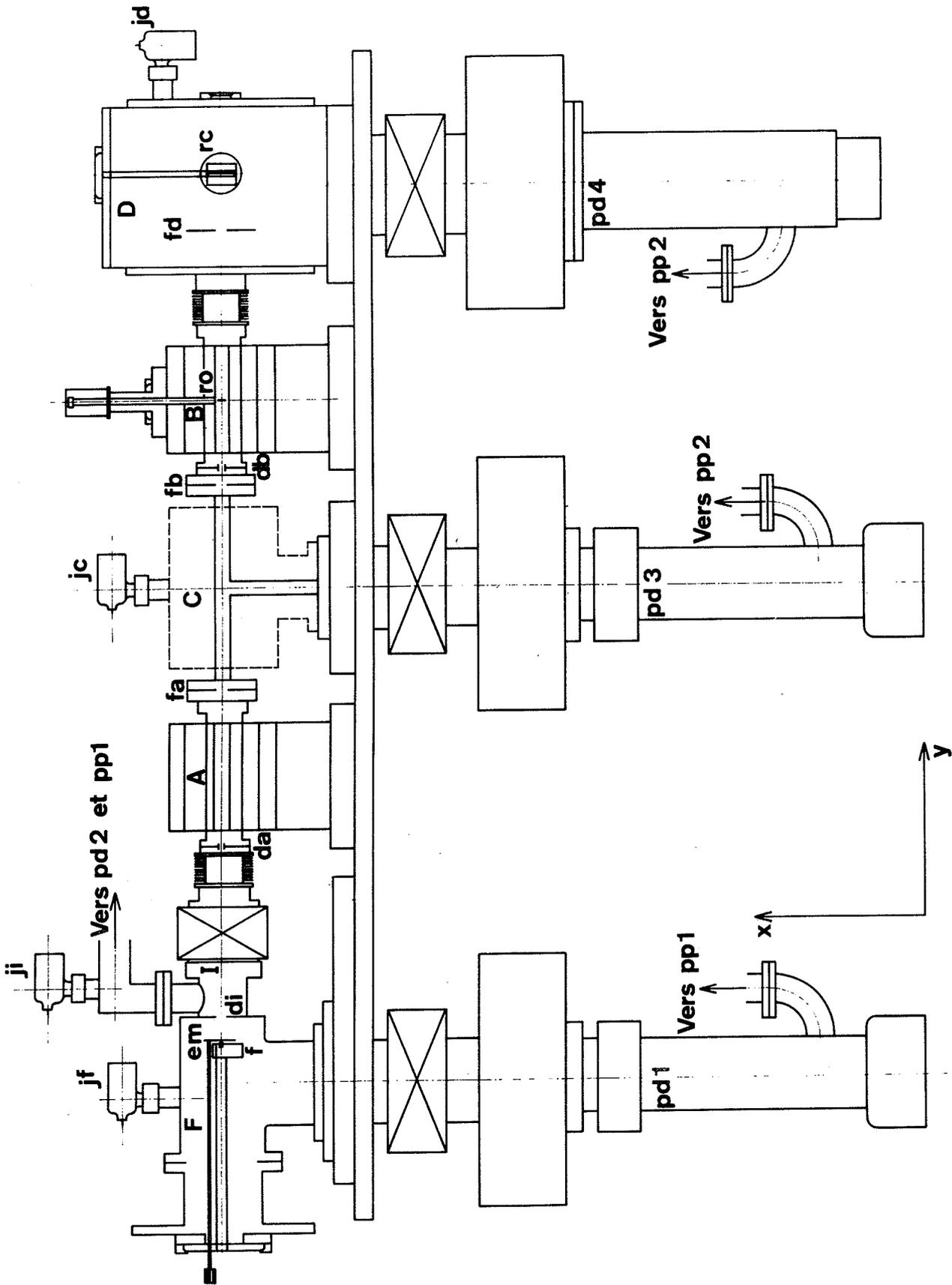
La détection de la résonance optique de type Rabi est liée au pompage optique, puisqu'elle repose sur les changements d'orientation du moment angulaire électronique des atomes au cours de l'interaction avec la lumière résonnante. Mais elle n'exige pas de transfert global de moment angulaire des photons aux atomes. On peut en effet détecter l'effet produit par une source de lumière non polarisée à bande large (lampe spectrale) : dans ce cas, les transferts $m_J = 1/2 \rightarrow m_J = -1/2$ et $m_J = -1/2 \rightarrow m_J = 1/2$ s'équilibrent et on ne crée pas d'orientation macroscopique du moment angulaire électronique. La méthode de Rabi est donc sensible au pompage optique de l'atome individuel. Lors de l'excitation par un laser monomode, une dissymétrie est néanmoins introduite dans l'excitation par la faible largeur spectrale du rayonnement vis-à-vis de la structure hyperfine de l'état fondamental. Il se produit alors un pompage hyperfin et, par suite, une inégalité de population entre les états $m_J = 1/2$ et $m_J = -1/2$.

3 - DESCRIPTION DE L'APPAREILLAGE.

3-1 GENERALITES.

Nous donnons dans la Fig. 18 un schéma d'ensemble de l'appareil de jet atomique, où sa structure modulaire apparaît nettement. Cette structure nous a permis, à partir du même appareillage de base, d'entreprendre des expériences de types très différents, en remplaçant certains modules (fentes, aimants, région d'interaction, détecteur) d'une expérience à l'autre. La Fig. 18 représente en fait le montage employé dans les expériences de déviation magnétique. La Photographie II montre une vue partielle de l'appareil prise au cours d'une expérience de ce type. La Photographie I donne une vue d'ensemble de l'appareil privé de ses aimants. Nous décrirons dans ce qui suit, en nous référant aux notations portées sur la Fig. 18, l'appareil tel qu'il est utilisé dans une expérience de type Rabi.

L'appareil de jet atomique n'a pris sa forme définitive qu'à la suite de nombreuses études préliminaires. Celles-ci ont essentiellement consisté à reprendre, dans l'ordre historique, les grandes étapes que nous avons rappelées en introduction. Des expériences de type Stern et Gerlach, utilisant alternativement comme aimant défecteur l'aimant A et l'aimant B, nous ont fourni des indications sur la structure du gradient de champ magnétique et sa valeur moyenne en fonction du courant de l'électro-aimant. Des expériences de type "moment nul" ont permis l'étalonnage du champ magnétique, ainsi que des tests précis de collimation et d'alignement du jet. A titre d'exemple, la Fig. 19 montre le résultat obtenu avec un jet de césium, qui améliore nettement celui de l'expérience originale [44].



50 cm

Fig. a

Fig. 18 - Schémas représentant l'appareil de jet atomique, à l'échelle 1/8, suivant deux plans orthogonaux.

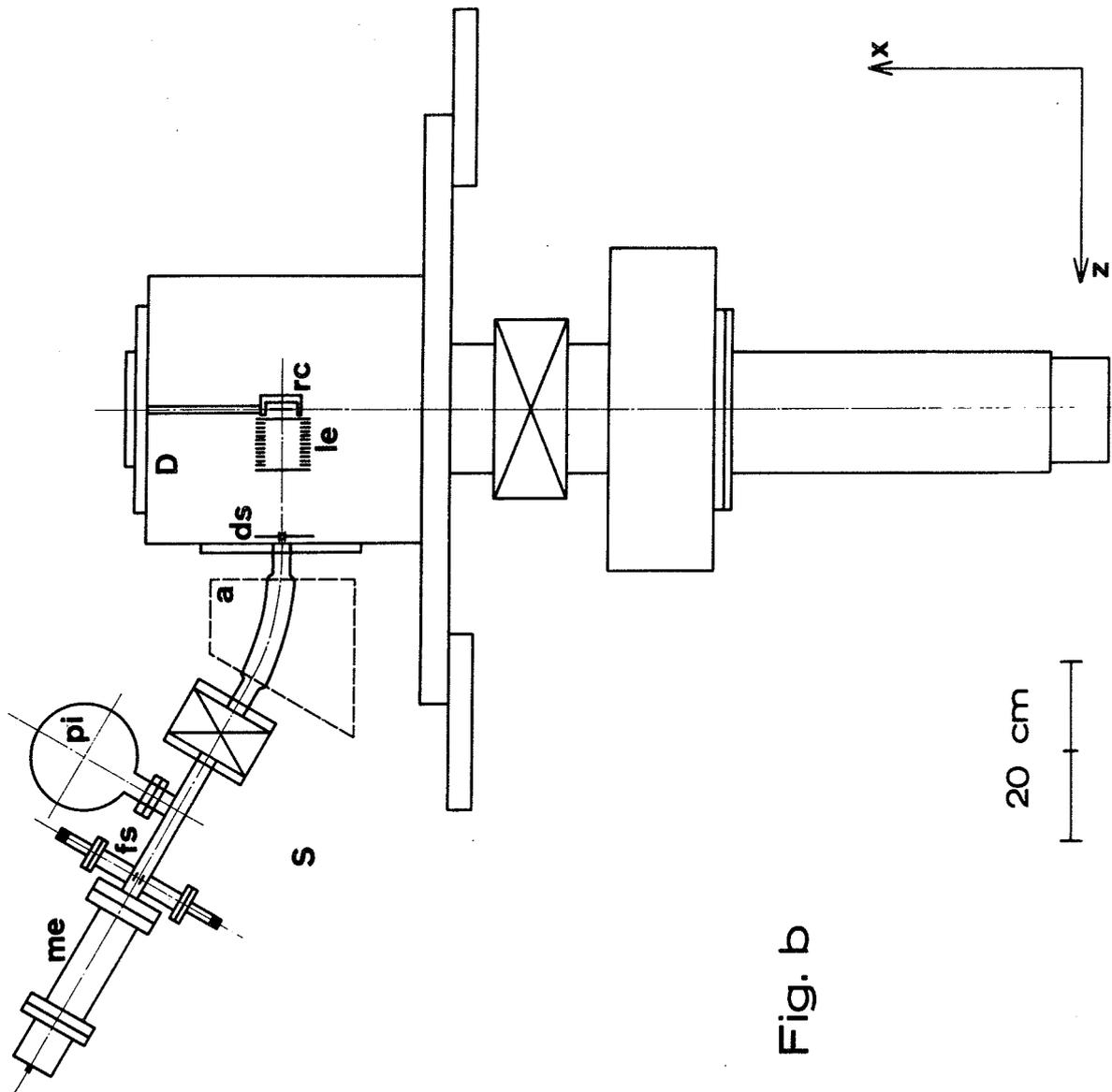


Fig. (a) : corps de l'appareil

Fig. (b) : Région du détecteur et du spectromètre de masse.

Signification des symboles :

F : région four ; f : four ; em : écran mobile ;

I : région intermédiaire ;

A : aimant défecteur ;

C : région d'interaction ;

B : aimant défecteur ; ro : ruban-obstacle ;

D : région détecteur ; rc : ruban chaud ; le : lentille électrostatique ;

S : spectromètre de masse ; a : aimant ; me : multiplicateur d'électrons ;

f : fentes ; d : diaphragmes ; j : jauges ;

pp : pompes primaires ; pd : pompes à diffusion ; pi : pompe à ionisation.

Les rectangles barrés d'une croix symbolisent les vannes.

Fig. b

20 cm

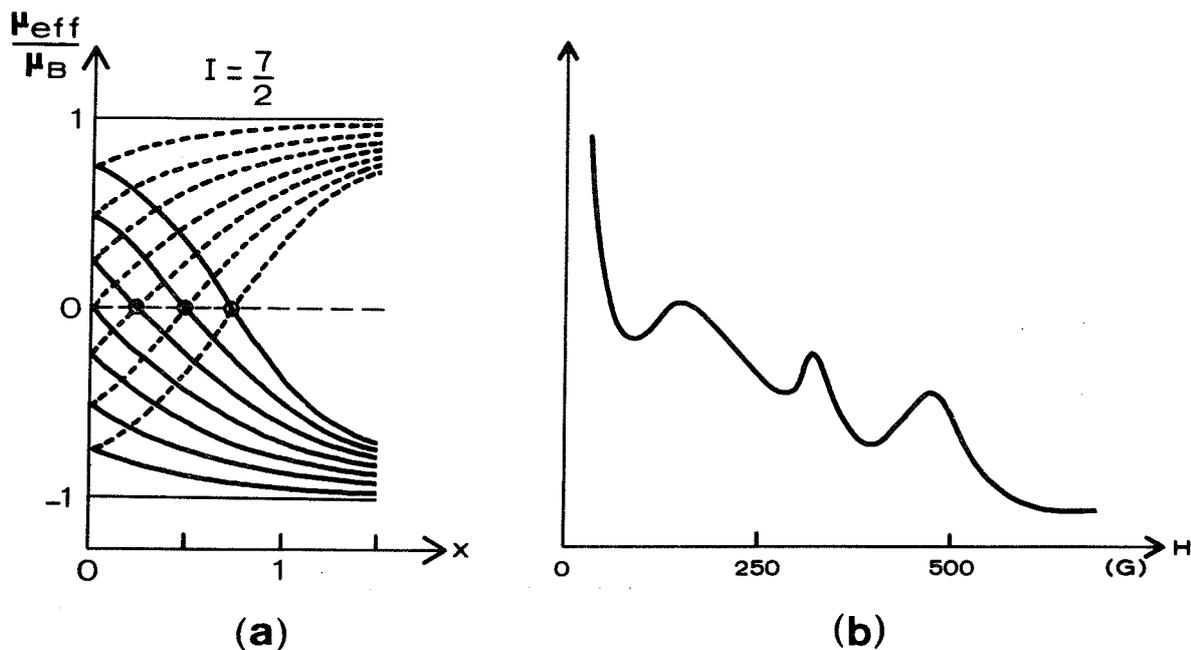


Fig. 19 - Expérience de "moment nul" sur un jet atomique de césium, utilisant l'aimant B de notre appareil comme aimant défecteur.

- (a) Pour trois valeurs non nulles du paramètre x (proportionnel au champ magnétique H), $\mu_{\text{eff}}(H) = 0$ dans un sous-niveau (F_m) donné de l'état fondamental. Pour ces valeurs, une partie des atomes de césium ne sont plus déviés et on doit observer une augmentation du signal au niveau du détecteur placé sur l'axe de l'appareil.
- (b) Relevé de l'intensité du jet en fonction du champ magnétique. Collimation du jet par 2 fentes de $30 \mu\text{m}$ distantes de 30 cm. Largeur du détecteur: $10 \mu\text{m}$.

Des expériences de résonance magnétique basse-fréquence et haute-fréquence, sur divers atomes alcalins, nous ont servi à tester le fonctionnement de l'ensemble de l'appareil dans le cadre de la méthode résonnante de Rabi. En effet, l'application de la méthode à la résonance magnétique étant très classique, on dispose de beaucoup de points de référence. Par ailleurs, la fraction d'atomes qui subissent la transition de résonance magnétique est connue immédiatement, ce qui permet d'utiles comparaisons du signal avec celui obtenu en résonance optique avec un même élément. Nos premières expériences de résonance optique ont été effectuées avec des sources lumineuses ordinaires.

Même dans les expériences utilisant des lasers, nous continuons à employer des lampes spectrales pour le réglage de l'appareil.

Nous avons établi un programme de calcul sur ordinateur des trajectoires atomiques, tenant compte de la variation du gradient de champ magnétique dans l'entrefer des aimants (d'une trajectoire à l'autre et le long d'une même trajectoire). L'interprétation des profils de Stern et Gerlach a donné lieu à un test sensible de ce programme qui, en retour, a été utilisé pour optimiser la géométrie de l'appareil : longueur des aimants, position relative de la source, des aimants, des fentes et obstacles, du détecteur ...

3-2 LE VIDE.

Le vide est principalement assuré dans le corps de l'appareil de jet atomique (Fig. 18 -a) par trois pompes à diffusion (CVC) de débit nominal respectif 300ℓ/s (pd_1), 300ℓ/s (pd_3) et 700ℓ/s (pd_4). Un piège à azote liquide est associé à chacune de ces pompes. La chambre intermédiaire I isole la partie four F, où la pression est moins stable et plus élevée, de la partie principale de l'appareil, dont elle est séparée par un diaphragme di sans influence sur la définition du jet. La chambre I est pompée séparément par une autre pompe à diffusion pd_2 de 100ℓ/s, à travers une tubulure comportant un piège à azote liquide. Les pompes pd_1 et pd_2 d'une part, pd_3 et pd_4 d'autre part, sont raccordées respectivement à deux pompes primaires mécaniques (Welch) pp_1 et pp_2 extérieures à la salle d'expériences. Une vanne permet d'isoler la région antérieure du reste de l'appareil, qui peut ainsi être maintenu sous vide pendant le chargement du four.

Les pressions typiques qui règnent en diverses parties de l'enceinte pendant le fonctionnement du jet sont de 6×10^{-7} torr dans la chambre four F (jauge jf), 3×10^{-7} torr dans la chambre intermédiaire I (jauge ji), 1×10^{-7} torr dans les chambres d'interaction C (jauge jc)

et de détection D (jauge jd). Rappelons qu'à une pression de 10^{-7} torr, le libre-parcours moyen des atomes est de plusieurs centaines de mètres.

La chambre S du spectromètre de masse (Fig. 18-b) ne communique avec le corps de l'appareil que pendant les expériences. La pression y est alors la même que dans la chambre D (toute remontée accidentelle de pression dans la chambre S est dans ce cas prévenue par la fermeture automatique de la vanne de communication, à commande électropneumatique). En dehors des expériences, la pression est maintenue dans la chambre S à une valeur voisine de 1×10^{-9} torr, grâce à la pompe à ionisation pi. Ce procédé limite la contamination du spectromètre de masse par l'huile des pompes à diffusion. Par ailleurs, on utilise dans cette partie de l'appareil des joints métalliques, selon la technique de l'ultra-vide.

3-3 LE FOUR, LES FENTES ET LE DETECTEUR.

Le jet atomique se propage dans l'appareil dans une direction horizontale Oy. Les fentes et obstacles qui définissent sa géométrie sont placés verticalement, suivant la direction Ox.

Le four f que nous avons employé le plus souvent est en cuivre et de conception classique. Il se compose de 2 parties : une partie inférieure contenant le métal et une partie supérieure contenant uniquement de la vapeur, séparées par une grille (pour éviter les projections susceptibles de boucher la fente). La fente du four ff est déterminée par 2 lames à bords biseautés. Sa largeur est en général fixée à 0,2 mm et son épaisseur est du même ordre de grandeur. Le four est chauffé électriquement de telle sorte que sa partie supérieure soit maintenue à une température plus élevée que sa partie inférieure (pour éviter la condensation au voisinage de la fente). Nous le chargeons directement

avec 5 grammes de métal pur, sous atmosphère d'azote, en utilisant un sas amovible. Un écran mobile est placé devant la fente-source permet éventuellement de couper le jet.

Les deux bords des fentes f_a et f_d peuvent être translatés indépendamment à l'aide de vis micrométriques graduées en $1/100$ mm. Comme nous le verrons (§.4-2-1) nous utilisons un seul côté de la fente f_b à la fois ; ses deux bords sont nettement séparés et déplacés globalement par l'intermédiaire d'une vis micrométrique unique. Les fentes f_a et f_b sont orientables avec précision autour de l'axe Oy .

Le jet atomique est détecté par ionisation de surface au contact du ruban chaud rc , situé à 120 cm de la fente du four ff . Il s'agit d'un ruban d'iridium de quelques centimètres de longueur, tendu verticalement par un ressort (Fig. 24). En fonctionnement, il est parcouru par un courant de quelques ampères portant sa partie médiane au rouge vif. Le travail d'extraction W de l'iridium ($W=5,4$ eV) est grand devant le potentiel d'ionisation I de la plupart des alcalins. Le ruban d'iridium permet d'ioniser totalement un jet de césium ($I=3,9$ eV) et même, à une température plus élevée, un jet de sodium ($I=5,1$ eV). Dans le système de détection le plus direct, le ruban chaud est soumis à un potentiel positif de 100 V par rapport à une plaque de cuivre jouant le rôle de collecteur d'ions. Dans l'autre système (sur lequel nous reviendrons au paragraphe 3-6), il est porté à une tension de 3000 V qui permet d'accélérer les ions vers le spectromètre de masse dans la direction Oz perpendiculaire à la direction Oy du jet. A cet effet, le ruban chaud est incliné à 45° sur l'axe Oy . La largeur de la section qu'il présente transversalement aux atomes incidents est typiquement de 1 mm. Les deux types de détection peuvent être utilisés alternativement au cours d'une même expérience. Les différents éléments de l'ensemble de détection (Fig. 22, 24) sont portés par une même tige et susceptibles d'être translatés globalement et de façon fine suivant la direction Oy .

L'alignement de la fente ff , de la fente fa et du ruban rc (ainsi que le centrage des aimants) est effectué à l'aide d'une lunette de visée se trouvant à l'arrière de l'appareil.

3-4 LES AIMANTS DEFLECTEURS.

Les champs magnétiques A et B sont engendrés par des aimants du type dipôle. La structure du champ magnétique est identique à celle du champ produit par 2 fils rectilignes, parallèles, traversés par des courants égaux et de sens opposé [60]. Considérons un plan orthogonal à ces deux fils et plaçons l'origine des coordonnées au milieu du segment de longueur $2a$ qui joint leurs sections P et Q (Fig. 20). Le champ et le gradient sont exactement calculables et possèdent la propriété remarquable d'être constants à quelques parties pour cent près dans la zone définie par $-1,15a < z < -1,25a$ et $-0,7a < x < 0,7a$

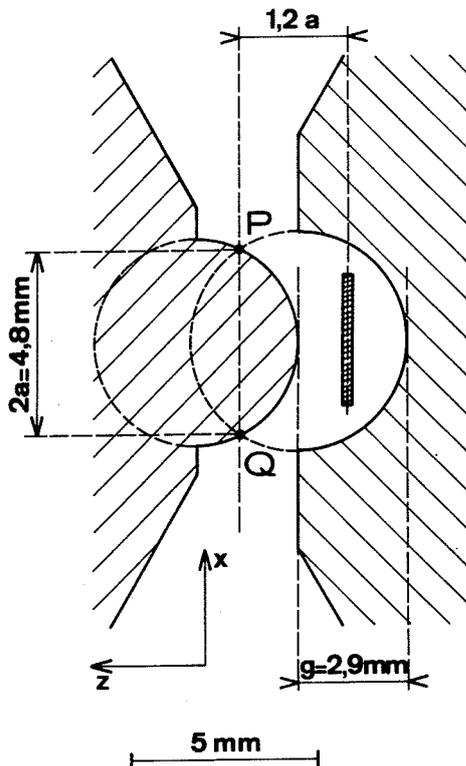


Fig. 20 - Coupe des pôles des aimants A et B. Le rectangle hachuré représente la région de l'entrefer où le champ et le gradient sont approximativement constants. Les points P et Q figurent les sections des deux "fils équivalents". Voir aussi Fig. 21.

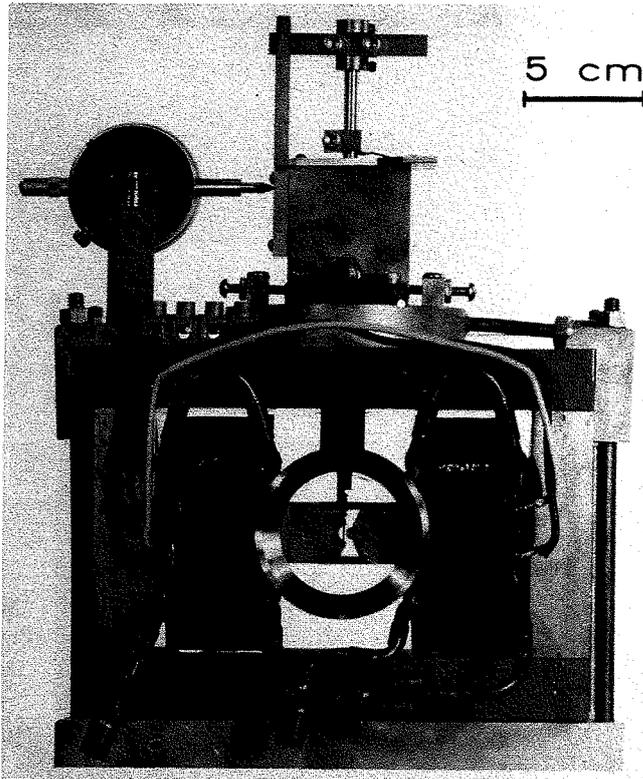


Fig. 21 - Photographie d'un aimant défecteur, montrant la forme des pièces polaires (voir aussi Fig.20).
Il s'agit ici de

l'aimant B : on remarque dans l'entrefer le ruban-obstacle, qui est surmonté du système permettant de le commander de l'extérieur.

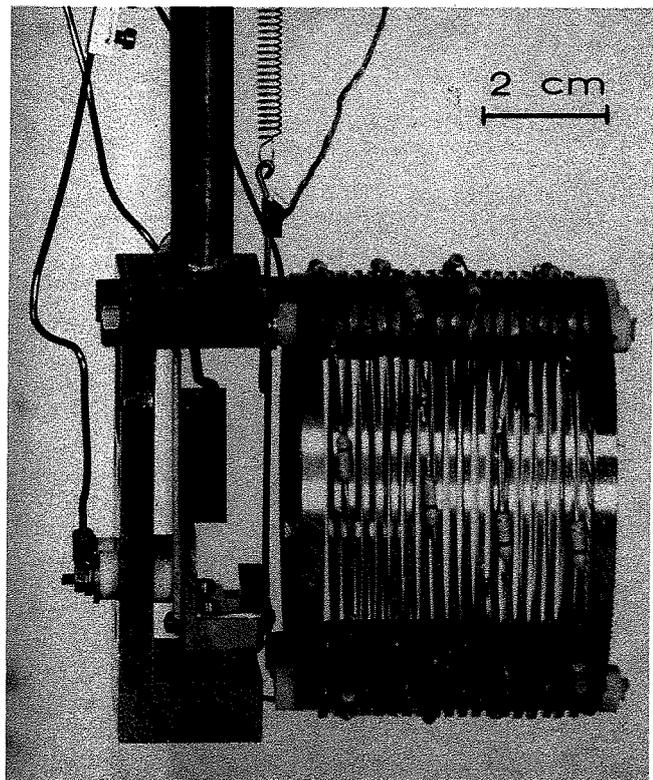
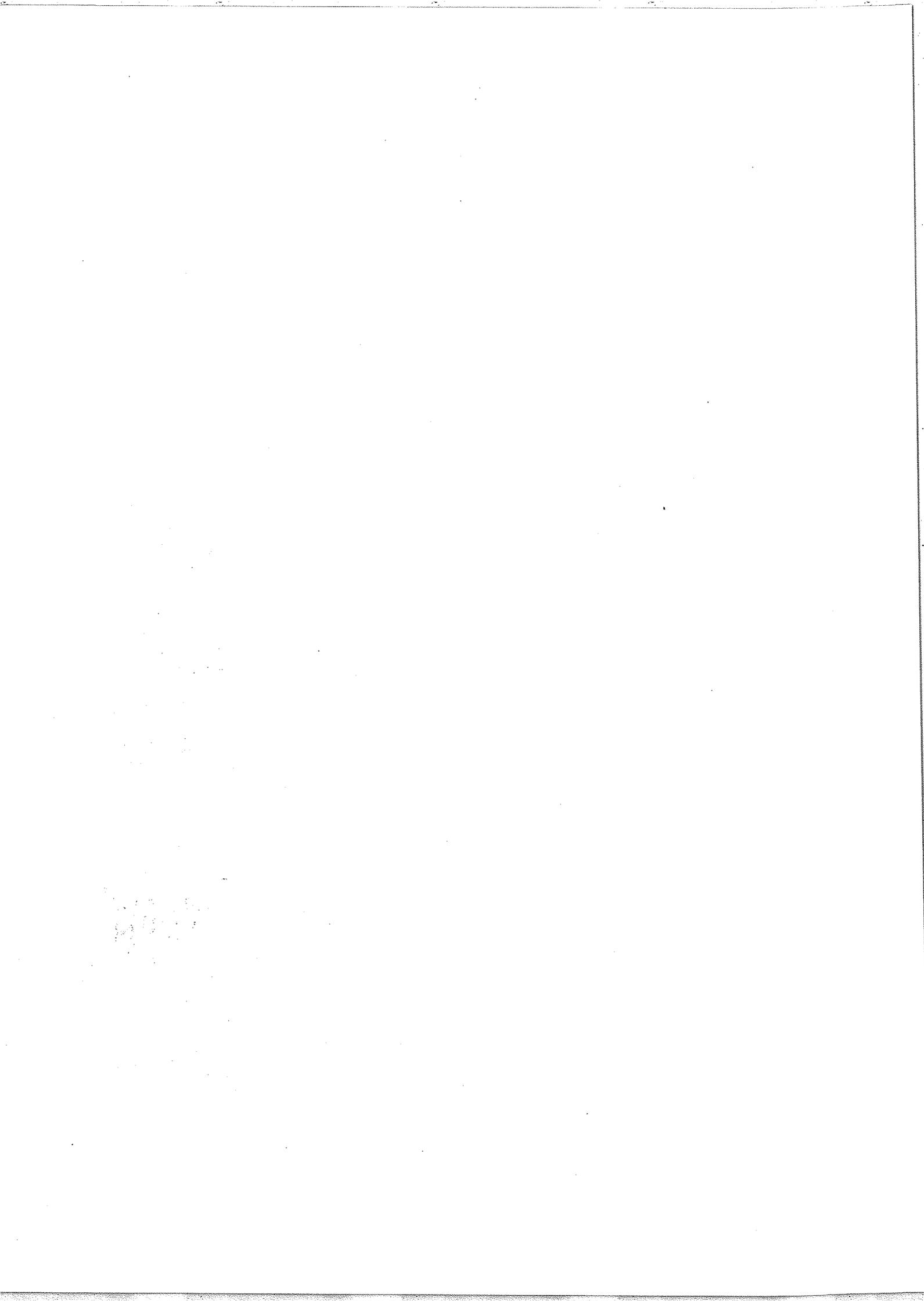


Fig. 22 - Le système d'ionisation du jet atomique et d'extraction des ions, qui constitue la source du spectromètre de masse (voir aussi Fig. 24).



(zone hachurée sur la figure). Les équipotentielles du système sont les cercles passant par P et Q. Pour produire un champ équivalent à celui des deux fils, les pôles des aimants doivent épouser la forme de deux de ces cercles.

Une vue de l'un de nos aimants est donnée sur la Fig. 21. Ces aimants ont été conçus au "Lawrence Radiation Laboratory" (Université de Californie, Berkeley). Comme le montre la Fig. 20, les pôles ont été choisis de telle sorte que la zone où le champ et le gradient sont approximativement constants soit placée au milieu de la distance g qui les sépare ($g = 2,9$ mm, $a = 2,4$ mm). Le rayon du pôle convexe n'est donc pas égal à a comme dans la plupart des appareils [15]. Les aimants sont en fait des électro-aimants excités chacun par 2 bobines de 850 tours traversées par un courant de quelques ampères. Les pièces polaires sont en Hyperco. La saturation est atteinte pour environ 18 000 G. Au centre de la zone utile de l'entrefer ($x = 0$, $z = -1,2a$), la relation entre le champ et le gradient est donnée par $(\partial H / \partial z) / H = 0,983 / a = 4 \text{ cm}^{-1}$. Nous pouvons donc réaliser des gradients supérieurs à 70 000 G/cm¹.

A la suite de nos études préliminaires (§.3-1), nous avons fixé les longueurs de l'aimant A et de l'aimant B à 7,7 cm et 16,8 cm respectivement (Fig. 26). Pour permettre un passage graduel entre les régions de champ fort A et B et la région de champ faible C, l'une des extrémités des pièces polaires est taillée en biseau; par ailleurs, les champs H_A , H_B et H_C sont parallèles et de même sens (Fig. 26). Ces diverses précautions permettent d'éviter les transitions parasites dites de Majorana ("Majorana flops"), qui peuvent se produire lorsque la direction du champ magnétique vu par l'atome en mouvement change à

1) La déviation subie par un atome de vitesse v , moment magnétique μ_B et masse m à la sortie d'un aimant de longueur l est $s = (1/2)(\mu_B/m)(\partial H/\partial z)(l/v)^2$. Si l'on prend l'exemple de l'aimant A ($l = 7,7$ cm) et d'atomes Na ($M = 23$, $v = 500$ m/s) dans un champ tel que $x = 10$ ($\partial H/\partial z = 25$ 000 G/cm), on trouve $s \approx 0,7$ mm.

une vitesse comparable à sa fréquence de Larmor. Deux diaphragmes horizontaux d_a et d_b de hauteur $1,4a \approx 3,5$ mm sont placés à l'entrée des aimants A et B. Au milieu du seul aimant B (Fig. 21) se trouve un ruban-obstacle r_o en métal non magnétique, qui peut être orienté autour d'un axe vertical pour présenter au jet une section ajustable et être translaté horizontalement dans l'entrefer (voir §.4-2-1).

3-5 LA REGION D'INTERACTION.

La chambre C, située entre les aimants A et B, peut prendre des formes très diverses. Sous sa forme la plus simple, c'est un tube de verre, de section carrée. Ce système permet de réaliser facilement des interactions successives avec plusieurs faisceaux lumineux. Le tube est orienté pour placer les faces d'entrée et de sortie du rayonnement à incidence de Brewster. Pour les expériences de résonance magnétique utilisant des boucles de radiofréquence ou une cavité hyperfréquence, nous disposons d'une chambre cylindrique d'axe parallèle au jet. Une autre chambre cylindrique, d'axe transversal, est conçue pour recevoir une cavité optique traversée par le jet atomique. La chambre contenant les plaques de champ électrique dans les études d'effet Stark a une structure plus compliquée.

Des bobines d'Helmholtz de diamètre 26 cm permettent de réaliser un champ magnétique H_C dans la direction de quantification Oz (parallèle aux champs H_A et H_B). Deux bobines de plus faible diamètre servent à compenser les champs parasites (champ terrestre, champs de fuite des aimants A et B et de l'aimant du spectromètre de masse) dans les directions Ox et Oy .

3-6 LE SPECTROMÈTRE DE MASSE.

La situation du spectromètre de masse par rapport à l'ensemble de l'appareillage est indiquée par la Photographie I et la Figure 18 . Notre spectromètre comporte un aimant-secteur d'angle 30° , utilisé de façon équivalente à la moitié de l'aimant d'angle 60° employé plus couramment. Au lieu d'être issus d'un même point, les ions incidents doivent former un faisceau parallèle perpendiculaire à la face d'entrée de l'aimant. Ils suivent dans le champ magnétique une trajectoire circulaire, puis convergent sur la fente de sortie du spectromètre. Un aimant de 30° est également utilisé dans l'appareil de jet atomique du "Argonne National Laboratory" (Argonne, Illinois) [61].

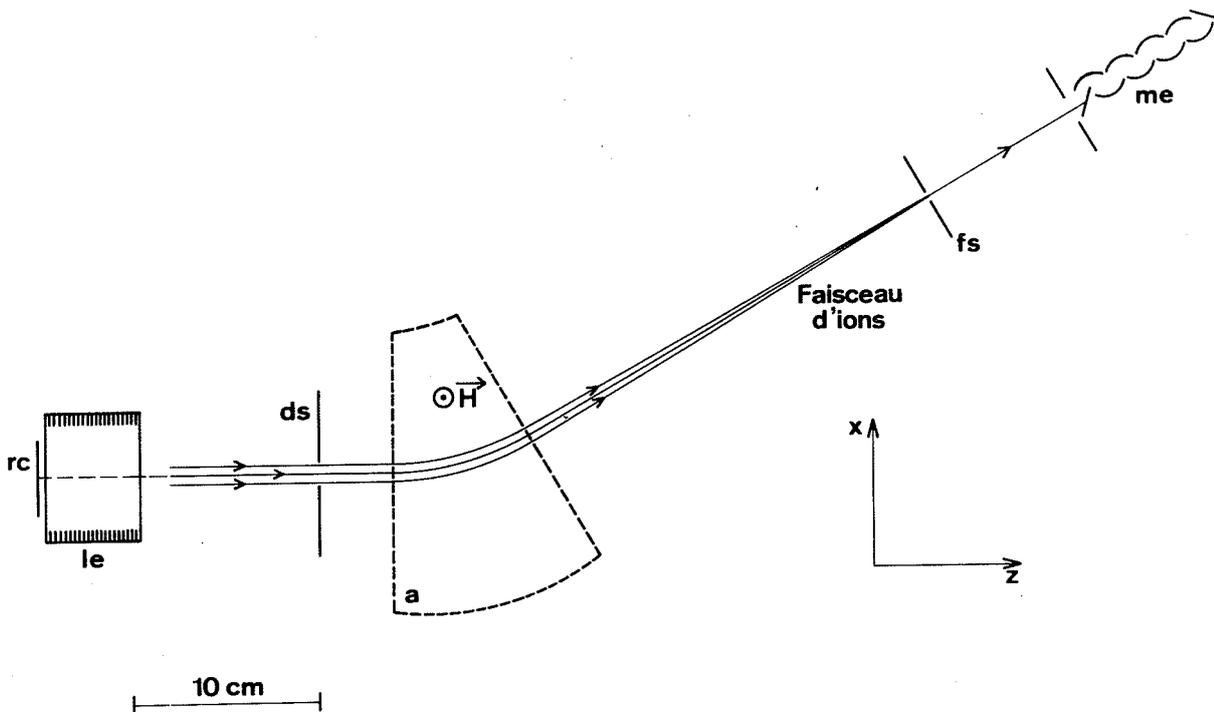


Fig. 23 - Coupe de l'ensemble du spectromètre de masse, montrant les trajectoires des ions.

La Figure 23 décrit l'ensemble du spectromètre de masse. L'aimant (noté a) d'angle 30° possède un rayon de 14,5 cm (rayon de la

trajectoire moyenne) et un entrefer de 1,6 cm. Ces paramètres décrivent en réalité les pièces polaires en Armco d'un électro-aimant excité par 2 bobines de 2150 tours supportant des courants de plusieurs ampères. La saturation est atteinte pour un champ magnétique d'environ 16 000 G ¹⁾

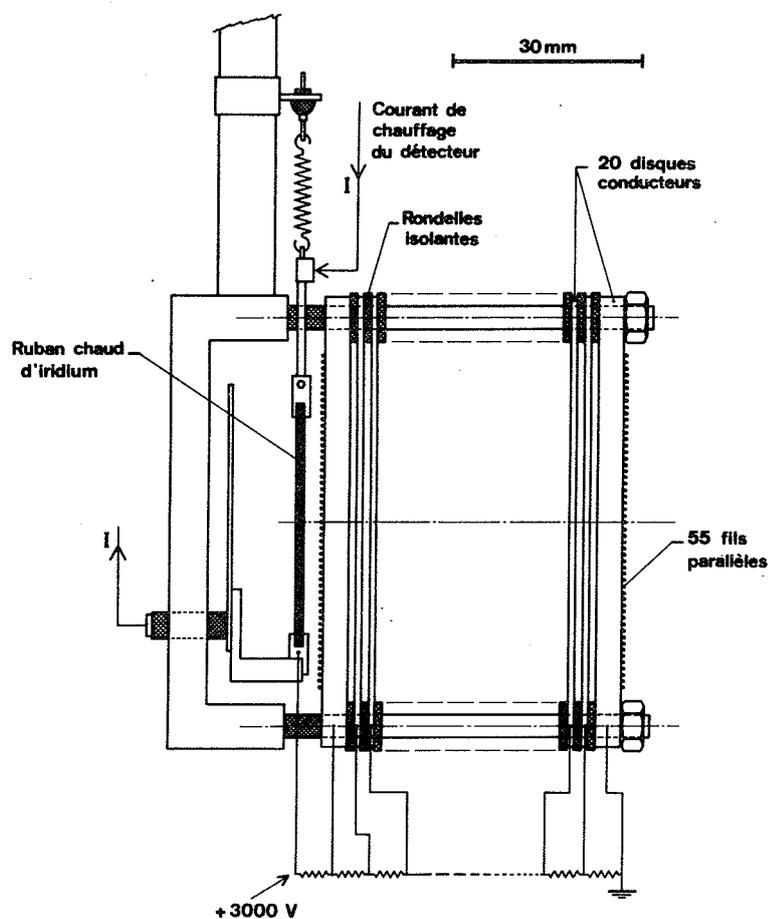


Fig. 24 - Schéma simplifié de l'ensemble formé par le ruban détecteur et la lentille électrostatique (Voir aussi Fig. 22).

1) La relation classique du spectromètre de masse est $eBR = (2mU)^{\frac{1}{2}}$ avec e : charge de l'électron, B champ magnétique, R rayon de la trajectoire, m : masse de l'ion, U tension accélératrice. Avec $R = 14,5$ cm et $U = 3000$ V, les pics de Na ($M = 23$) et de Cs ($M = 133$) sont observés respectivement pour $B = 2\ 600$ G et $B = 6\ 240$ G.

La Figure 22 montre une vue du système qui constitue la source du spectromètre de masse. La lentille électrostatique le a pour fonction d'extraire les ions émis par le ruban chaud rc et d'en former un faisceau parallèle monoénergétique. Sa structure (Fig. 24) est similaire à celle employée par Zak dans son détecteur universel [62]. Elle permet d'obtenir une grande ouverture dans deux directions perpendiculaires. A l'intérieur de la lentille le , les ions passent progressivement d'un potentiel de +3000 V à la masse. Avant d'entrer dans l'aimant a , le faisceau ionique est défini par un diaphragme ds . La fente du spectromètre fs est placée à 25 cm de la face de sortie de l'aimant. Ses deux bords sont commandés indépendamment par des vis micrométriques. Les ions transmis par la fente fs arrivent sur la cathode d'un multiplicateur d'électrons me .

Dans un appareil de jet atomique, le spectromètre de masse peut avoir deux rôles : la sélection d'un isotope particulier dans une expérience portant sur un jet polyisotopique, ou l'élimination des ions ne provenant pas de l'ionisation des atomes du jet. Ces ions parasites sont issus des impuretés contenues dans le ruban chaud et dans le métal vaporisé dans le four, et donnent naissance à la fois à un fond et à un bruit. Dans les échantillons d'iridium que nous utilisons, les impuretés sont presque entièrement constituées par du potassium (Fig. 25). C'est surtout dans le second rôle que nous avons utilisé le spectromètre de masse. Par exemple, dans une expérience sur le sodium, il est capable de transmettre quasi-totalement cet élément ($M=23$) avec une résolution suffisante pour exclure le potassium ($M=39$) : il permet donc d'éliminer la plupart des ions parasites sans perte de signal. Avec une fermeture plus complète de la fente fs , la résolution devient assez élevée pour qu'on puisse par exemple séparer les isotopes Rb^{85} et Rb^{87} d'un jet de rubidium naturel. La Fig. 25 donne un exemple de spectre fourni par le spectromètre de masse.

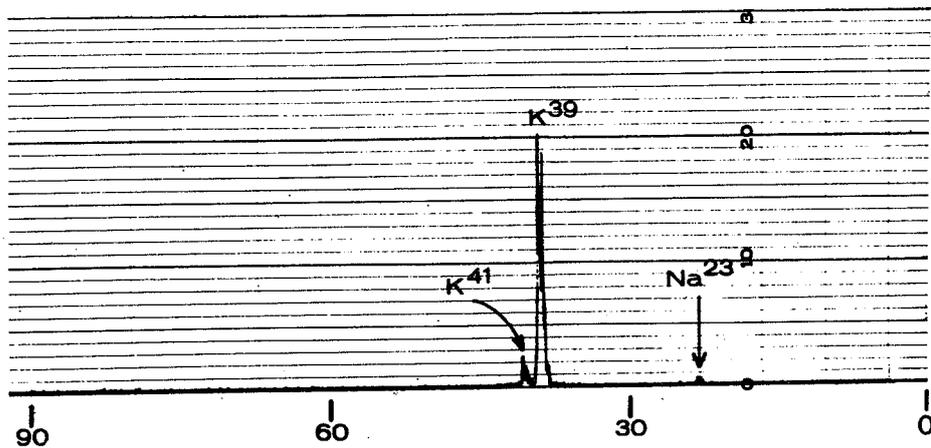
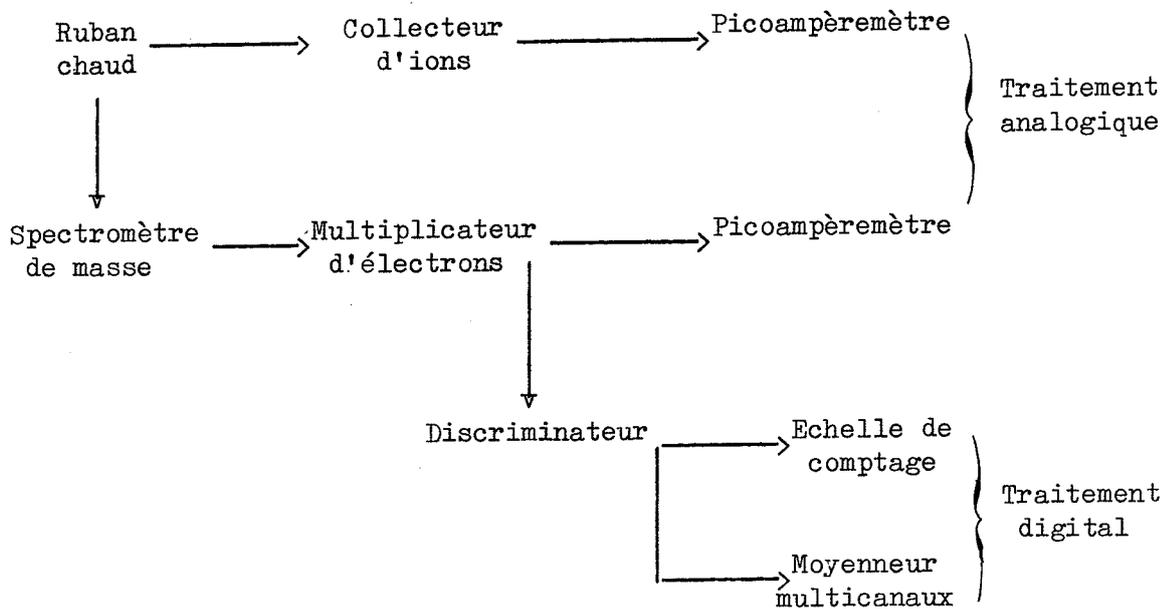


Fig. 25 - Enregistrement du spectre de masse des ions émis par le ruban chaud d'iridium (en l'absence de jet atomique).

3-7 TRAITEMENT DU SIGNAL.

Les différentes possibilités de détection et de traitement du signal sont classées dans le tableau suivant :



La plus forte sensibilité du picoampèremètre (Keithley 417) correspond à une pleine échelle de 10^{-13} A , son courant de fuite est de 10^{-15} A (ce qui est équivalent à un fond d'environ 10^4 atomes/s). Le multiplicateur d'électrons (Balzers SEV 317) crée une amplification de 10^5 pour une tension appliquée de 2000 V. Dans le cas d'un traitement digital du signal, il est suivi de l'ensemble du discriminateur à seuil réglable et de l'échelle de comptage (Elscint). Le spectromètre de masse étant réglé sur le pic du sodium, le jet coupé et le ruban détecteur froid, le taux de comptage est de l'ordre de 1 coup/s (ce chiffre donne la limite théorique du nombre d'atomes que l'on peut détecter). Le signal peut aussi être intégré dans un analyseur multicanaux (Inter-technique SA 41) si l'on veut améliorer le rapport Signal/Bruit et éliminer l'effet des dérives et instabilités de l'intensité du jet.

4 - ORDRES DE GRANDEUR EXPERIMENTAUX.4-1 JET NON DEFLECHI.

D'après la théorie cinétique des gaz, le nombre total d'atomes sortant du four par unité de temps est :

$$Q_s = \frac{1}{4} N \bar{v} A_s \quad , \quad (25)$$

où A_s est la surface de la fente-source (dont les bords sont supposés sans épaisseur), N le nombre d'atomes par unité de volume de la vapeur contenue dans le four :

$$N = \frac{P}{KT} \quad , \quad (26)$$

et \bar{v} leur vitesse moyenne :

$$\bar{v} = \frac{2}{\sqrt{\pi}} \left(\frac{2KT}{m} \right)^{\frac{1}{2}} \quad (27)$$

(les autres notations sont classiques : p est la pression, T la température absolue et m la masse des atomes). L'expression (25) est établie dans l'hypothèse où le libre-parcours moyen λ dans la source est très grand devant la largeur w de la fente-source. On suppose le détecteur, de surface A_d , situé à une distance L dans la direction normale au plan de la fente source. Le nombre d'atomes frappant le détecteur par seconde (intensité du jet non défléchi) est alors :

$$I = Q_s \frac{\Omega}{\pi} \quad (28)$$

$\Omega = A_d/L^2$ étant l'angle solide sous lequel on voit le détecteur depuis la source. Dans nos expériences, la surface utile du détecteur est typiquement $A_d = 3,5 \times 10^{-2} \text{ cm}^2$ (largeur du ruban : 1 mm, hauteur autorisée par les diaphragmes : 3,5 mm) et la distance L est de 120cm. D'où :

$$\Omega \approx 2,5 \times 10^{-6} \text{ steradians.}$$

Les équations (25) à (28) indiquent que lorsqu'on augmente la température du four, l'intensité du jet croît approximativement comme la pression p . Expérimentalement, cela n'est vrai que pour les pressions inférieures à la valeur $p = 0,1$ torr, pour laquelle $\lambda \sim w$. Au-delà de cette valeur, il se forme un nuage devant la source et il se produit un écoulement hydrodynamique. En pratique, nous avons effectué la plupart de nos expériences avec une pression $p \approx 10^{-2}$ torr, soit avec des températures $T \approx 573$ K ($\bar{v} = 850$ m/s) pour le sodium et $T \approx 433$ K ($\bar{v} = 300$ m/s) pour le césium. Ces conditions correspondent à une intensité du jet direct $I \approx 10^{10}$ atomes/s, équivalente à un courant d'ions de $1,6 \times 10^{-9}$ A. Au niveau de la zone d'interaction avec le rayonnement, la densité du jet est alors de l'ordre de 10^8 atomes/cm³.

4-2 EXPERIENCE DE RESONANCE OPTIQUE (MONTAGE "FLOP-IN").

4-2-1 Sélection des trajectoires.

La Fig. 26 décrit un réglage typique de l'appareil utilisé en montage "flop-in". La disposition des fentes et des obstacles que nous avons représentée dans cet exemple permet de détecter presque exclusivement des atomes ayant effectué dans la région C un transfert $m_J = 1/2 \rightarrow m_J = -1/2$.

Les étapes principales du réglage sont notées par des numéros allant de ① à ④ sur la figure qui suit. Le Tableau 1 indique concrètement le résultat de chacune de ces étapes. Les chiffres figurant dans ce tableau correspondent à des valeurs typiques obtenues en illuminant les atomes à l'aide d'une seule lampe spectrale (à vapeur de sodium ou de césium) placée à environ 3 cm du jet atomique dans la région C.

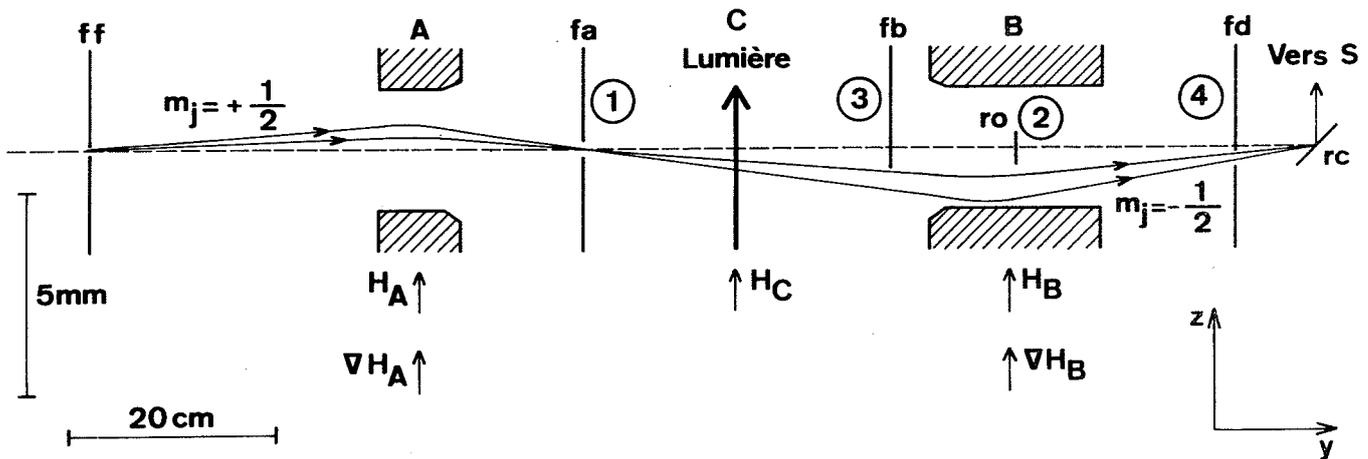


Fig. 26 - Détection sélective des transferts $m_J = 1/2 \rightarrow m_J = -1/2$ en montage "flop-in": schéma à l'échelle des trajectoires atomiques. Noter que l'échelle Oz est dilatée d'un facteur 40 par rapport à l'échelle Oy .

Le signal S est le nombre d'atomes refocalisés sur le détecteur après avoir subi un changement de moment magnétique effectif dans l'interaction avec la lumière, le fond F le nombre d'atomes arrivant sur le détecteur sans avoir subi un tel changement. Sous forme abrégée :

I = aimants "off"
 F = lumière "off"
 S = lumière "on" - lumière "off" } aimants "on"

	$\frac{S}{F}$	$\frac{S}{I}$
①	1	$\frac{1}{20}$
②	2	$\frac{1}{25}$
③	10	$\frac{1}{100}$
④	50	$\frac{1}{300}$

Tableau 1
 (Lampe spectrale)

L'étape ① est la fermeture symétrique des deux bords de la fente fa à une largeur ($\sim 0,4$ mm) telle que l'angle solide sous lequel le détecteur rc est vu depuis la fente-source ff ne soit pas diminué. En pratique, en l'absence des champs A et B , la fente fa est fermée jusqu'à ce que le nombre d'atomes détectés commence à baisser. L'étape ② consiste à masquer le détecteur à l'aide du ruban-obstacle ro : celui-ci est d'abord centré, puis orienté jusqu'à ce qu'on ne détecte plus le jet non défléchi. Cette étape a pour effet de supprimer le fond créé par les atomes très rapides non défléchis par les champs A et B . Compte-tenu de cette géométrie interne de l'appareil, les courants des électro-aimants A et B sont ajustés de façon à obtenir le signal maximal en présence de la lumière. A partir de l'étape ③, le réglage devient dissymétrique : on sélectionne les trajectoires correspondant à un transfert $m_J \rightarrow -m_J$ donné et on élimine celles qui correspondent au transfert inverse. A cet effet, on place l'un des bords de la fente fb pour fermer l'entrée de l'un ou l'autre des côtés de l'aimant B . Cette étape se traduit par une diminution importante du fond ; par ailleurs, elle ne fait pas perdre beaucoup de signal si la lumière excitatrice est fournie par un laser monomode. Le rayonnement monochromatique n'est accordé qu'à une transition hyperfine à la fois et on n'excite essentiellement les atomes qu'à partir d'états ayant une valeur de m_J donnée. L'étape finale ④ réalise une sélection plus sévère des trajectoires. La fente fa est plus fermée, le bord de la fente fb poussé plus loin, ainsi que l'obstacle ro (par ailleurs orienté de façon à présenter une plus grande section transversale), la fente fd est fermée.

Dans le cas d'un laser à colorant monomode accordé à la transition hyperfine $F=2 \longleftrightarrow F'=2$ de la raie D_1 du sodium, en limitant la puissance du faisceau lumineux à une valeur optimale (suffisante pour exciter tous les atomes, mais ne provoquant pas d'élargissement radiatif), on observe typiquement des rapports :

$$S/F = 10 \quad , \quad S/I = \frac{1}{2} \quad (\text{Laser})$$

dans les conditions du réglage ①. On obtient donc sans difficultés

un signal important et un rapport S/F appréciable. Toutefois, le gain en signal par rapport à l'excitation par une lampe spectrale (Tab. 1) n'est pas aussi élevé qu'on aurait pu l'imaginer a priori. En effet, le mécanisme qui permet l'observation de la résonance, lié au pompage optique, est tel que le signal maximum est atteint pour une intensité de rayonnement relativement faible (§.2). Par ailleurs, le signal produit par une lampe résulte d'un grand nombre de raies émises simultanément (composantes hyperfines de D_1 et D_2) et d'un grand nombre d'angles d'incidence allant presque de $-\pi/2$ à $\pi/2$ (tout le profil Doppler de chaque raie émise est utilisé). En outre, pour un réglage symétrique du type ①, on obtient de façon égale les contributions $m_J = 1/2 \rightarrow m_J = -1/2$ et $m_J = -1/2 \rightarrow m_J = 1/2$.

4-2-2 Angle solide effectif.

Ecrivons le signal de résonance sous la forme :

$$S = \xi \eta Q_s \frac{\Omega_{\text{eff}}}{\pi} \quad (29)$$

où, pour un atome donné, ξ est la probabilité d'être excité dans la région C, et η la probabilité d'effectuer un transfert du type $m_J \rightarrow -m_J$ lors de cette excitation. Le coefficient η peut être regardé comme le coefficient d'efficacité de la méthode de détection. Nous considérerons le plus souvent que $\xi = 1$, ce qui est facilement réalisable avec un laser. L'angle solide effectif défini par (29) ne dépend que de la géométrie de l'appareil. Il est indépendant de l'interaction électromagnétique ¹⁾ qui a lieu dans la région C. D'après (28) et (29) :

$$\frac{\Omega_{\text{eff}}}{\Omega} = \frac{1}{\xi \eta} \frac{S}{I} \quad (30)$$

¹⁾ Dans le cas de la résonance magnétique, le transfert s'effectue depuis un état $(F_0 m_0)$ unique du groupe m_J vers un état $(F_1 m_1)$ unique du groupe $-m_J$. Toutes les transitions étant totalement efficaces, ρ est simplement la probabilité pour que l'atome soit dans l'état $(F_0 m_0)$: $\rho = [2(2I+1)]^{-1}$.

Dans l'exemple du pompage par un rayonnement monochromatique, en polarisation linéaire σ , de la transition $F=2 \longleftrightarrow F'=2$ de la raie D_1 , nous établirons que la probabilité du transfert $m_J = 1/2 \rightarrow m_J = -1/2$ est $\eta \simeq 1/2$ (§.5-2-2). On déduit des valeurs numériques que nous avons données précédemment : $\Omega_{\text{eff}}/\Omega \simeq 1$, soit :

$$\Omega_{\text{eff}} \simeq 2,5 \times 10^{-6} \text{ steradians.}$$

Ce résultat d'origine expérimentale est logique. En effet, si les atomes étaient soumis dans les aimants A et B à un champ de forces parfaitement uniforme, les trajectoires associées à chaque classe de vitesse seraient translatées globalement par rapport à celles du jet non défléchi et on obtiendrait rigoureusement $\Omega_{\text{eff}} = \Omega$.

L'angle solide Ω associé au jet non défléchi est de l'ordre de grandeur de celui qui serait imposé par la seule limitation de l'effet Doppler dans l'interaction optique. Le fait que $\Omega_{\text{eff}} \simeq \Omega$ montre que la méthode de type Rabi n'exige pas de sélection matérielle des atomes plus sévère que les méthodes dans lesquelles le jet n'est pas défléchi. La courbure des trajectoires et les obstacles qu'elles rencontrent n'ont pas pour effet de limiter le nombre d'atomes qui contribuent au signal, mais d'éliminer ceux qui n'y contribuent pas.

4-3 COMPARAISON AVEC D'AUTRES TECHNIQUES DE DEVIATION MAGNETIQUE.

4-3-1 Méthode de Rabi "flop-out".

Pour un appareil donné, le signal est le même en montage "flop-in" et en montage "flop-out". Mais, dans le second cas, il apparaît en absorption sur un fond important. La détection des signaux faibles est alors rendue plus difficile par l'augmentation du bruit d'origine statistique et par la sensibilité accrue aux fluctuations d'intensité du jet atomique.

En utilisant les mêmes notations que précédemment, on peut écrire pour un montage "flop-out" :

$$F = Q_s \frac{\Omega_{\text{eff}}}{\pi} \quad , \quad (31)$$

$$S = \xi \eta F \quad . \quad (32)$$

On a donc $S/F = \xi \eta$ au lieu de S/F très grand (infini en théorie) pour un montage "flop-in". Dans l'exemple que nous avons donné, on obtiendrait $S/F = 1/2$ au lieu de $S/F = 10$.

4-3-2 Méthode de Rabi avec aimant focalisateur.

Le système focalisateur le plus simple est l'aimant hexapolaire, qui crée une force radiale proportionnelle au rayon. Un tel aimant fait converger en un même point les atomes issus d'un point donné et de même μ_{eff} négatif, indépendamment de leur angle d'entrée mais à condition qu'ils aient la même vitesse. Le premier appareil, construit par Lemonick, Pipkin et Hamilton [63], associait 2 aimants hexapolaires agissant respectivement comme une lentille convergente et une lentille divergente. Mais, dans ce dispositif, il faut pour obtenir un signal de "flop-in" employer un détecteur en forme de couronne circulaire, qui recueille beaucoup d'atomes n'ayant pas subi de changement d'état. Aussi, dans les appareils suivants, l'aimant A était un aimant

hexapolaire et l'aimant B un aimant à gradient constant : aimant dipolaire [64], ou aimant quadrupolaire [65]. La seconde solution semble meilleure car elle permet de conserver la symétrie de révolution. Dans tous les cas, l'aimant B est conçu de façon à ce que ce soit l'aimant A focalisateur qui détermine entièrement l'angle solide accepté, et on a en théorie $\Omega_{\text{eff}}/\Omega > 1$. Par rapport aux appareils utilisant 2 aimants dipolaires, on doit donc obtenir un rapport S/I supérieur. Le rapport S/F doit être légèrement inférieur car il est nécessaire d'utiliser un détecteur plus large à cause de l'aberration sur les vitesses.

4-3-3 Méthode de Bucka.

Cette autre méthode de déviation magnétique n'utilise qu'un aimant hexapolaire [52]. L'aimant focalise sur le détecteur placé sur l'axe les atomes de μ_{eff} négatif ($m_J=1/2$ pour Na en champ fort) et éloigne du détecteur les atomes de μ_{eff} positif ($m_J=-1/2$). L'interaction avec le rayonnement électromagnétique se situe avant l'entrée dans l'aimant. Si elle produit une augmentation (resp. diminution) de la proportion d'atomes de μ_{eff} négatif, elle se traduit par une augmentation (resp. diminution) du signal. Il est à noter que, par opposition avec la méthode de Rabi, l'interaction électromagnétique doit ici créer une dissymétrie entre les populations des états de $m_J=1/2$ et de $m_J=-1/2$ (une orientation du moment angulaire électronique) avant l'analyse magnétique : les contributions des transferts $-1/2 \rightarrow 1/2$ et $1/2 \rightarrow -1/2$ se retranchent au lieu de s'ajouter.

La méthode de Bucka, qui consiste à détecter la modification produite à résonance du nombre d'atomes atteignant le détecteur en l'absence d'interaction, s'apparente plus à la méthode de Rabi "flop-out" qu'à la méthode de Rabi "flop-in" (on a toujours $S/F < 1$). Des expressions analogues à (31) et (32) s'appliquent :

$$F = \frac{1}{2} Q_s \frac{\Omega_{\text{eff}}}{\pi} \quad , \quad (33)$$

$$S = \xi \eta F \quad (34)$$

(le facteur $1/2$ dans (33) vient de ce qu'on ne peut focaliser que les atomes de $m_J=1/2$). En comparaison avec la méthode de Rabi "flop-in" avec aimants dipolaires, la méthode de Bucka fournit un rapport $\Omega_{\text{eff}}/\Omega$ supérieur ¹⁾ mais un rapport S/F inférieur. En comparaison avec la méthode de Rabi avec un aimant hexapolaire, le rapport $\Omega_{\text{eff}}/\Omega$ est en principe le même et le rapport S/F reste inférieur. Cette dernière méthode semble donc réunir le plus d'avantages en théorie.

Duong et Vialle ont adapté la méthode de Bucka à la spectroscopie optique par laser accordable [54]. Leur expérience ayant été réalisée sur la raie D_1 du sodium, il est facile d'effectuer une comparaison chiffrée sur la base des résultats expérimentaux. On extrait de la référence [54] les données $F \approx \frac{1}{2} \times 10^{-5} Q_S$ et $\frac{S}{F} \approx \frac{1}{3}$, soit $S \approx 1,5 \times 10^{-6} Q_S$ et $F \approx 5 \times 10^{-6} Q_S$. Nous avons vu que, dans nos expériences, $S \approx \frac{1}{2} \times \frac{2,5 \times 10^{-6}}{\pi} Q_S$ et $\frac{S}{F} \approx 10$, soit $S \approx 4 \times 10^{-7} Q_S$ et $F \approx 4 \times 10^{-8} Q_S$. On voit que, pour un même nombre d'atomes disponibles au niveau de la source, la méthode de type Bucka fournit un signal presque 4 fois plus élevé mais un fond plus de 100 fois plus important que la méthode de type Rabi "flop-in". Par ailleurs, le gain dans l'angle solide accepté a pour contre-partie une perte de résolution par élargissement Doppler. Toutefois, la méthode de Bucka présente l'avantage d'une mise en oeuvre plus simple et plus compacte, et elle a donné de bons résultats dans l'expérience en ligne sur les isotopes radioactifs du sodium [14].

¹⁾ Il est néanmoins possible d'atteindre des valeurs de Ω_{eff} très élevées en valeur absolue avec des appareils de Rabi à aimants classiques. Des appareils de ce type ont d'ailleurs permis l'étude d'un grand nombre d'isotopes radioactifs par résonance magnétique. Par exemple, dans le dernier appareil construit au "Brookhaven National Laboratory", l'entrefer des aimants défecteurs est 5 fois plus large que dans le nôtre [66].

5 - APPLICATIONS SPECTROSCOPIQUES.5-1 RESULTATS EXPERIMENTAUX.

Dans la plupart de nos expériences, le faisceau laser était dirigé horizontalement suivant Oz et se trouvait donc parallèle au champ magnétique faible H_C appliqué dans la région C (Fig. 26). Tous les spectres obtenus en détection de type Rabi qui figurent dans ce mémoire ont été observés en polarisation linéaire σ .

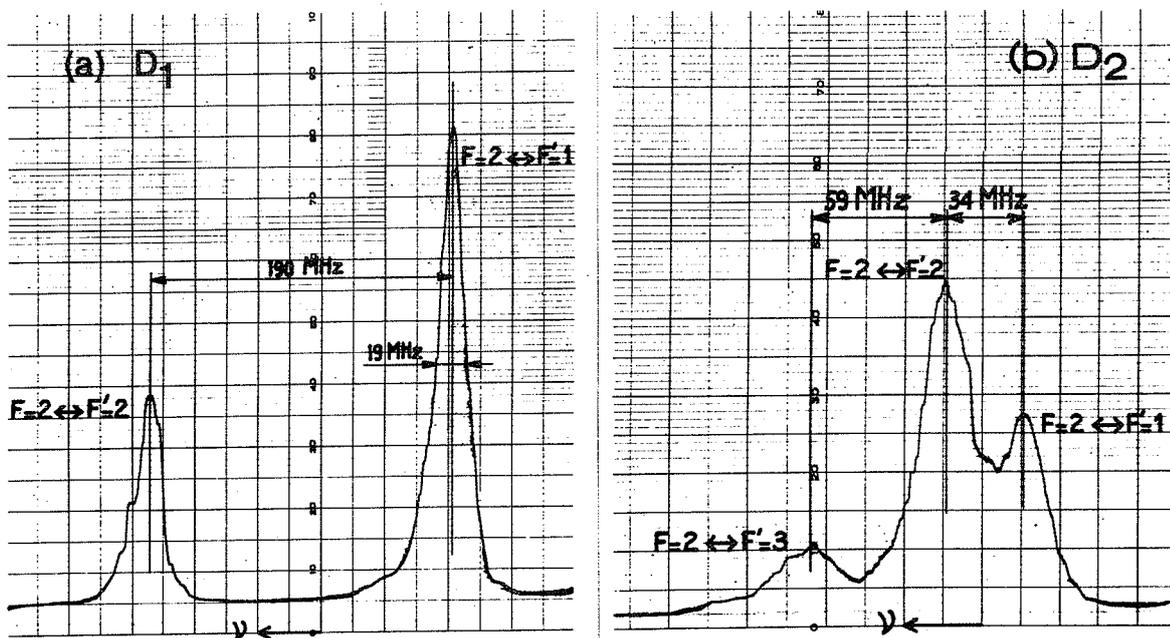


Fig. 27 - Deux de nos premiers enregistrements de la structure hyperfine des raies de résonance du sodium (Janvier 73).
 (a) Groupe des composantes de la raie D_1 issues de $F=2$;
 (b) Groupe des composantes de la raie D_2 issues de $F=2$.

Nous présentons dans ce paragraphe quelques exemples d'enregistrements de structure hyperfine. La Figure 27 a été obtenue avec un jet de sodium excité par le laser à colorant LAC. La largeur des raies est d'environ 20 MHz. La Figure 28 a été obtenue avec un jet de césium excité par le laser à GaAs, dans des conditions voisines de celles de l'expérience de détection optique (Fig. 6). Nous n'avons pas choisi les enregistrements des groupes de plus haute fréquence de la raie D_2 du sodium ou du césium, qui ne comportent que 2 composantes. En effet, telle que nous l'avons décrite (§.2), la méthode de type Rabi ne permet pas d'observer les transitions $F=1 \longleftrightarrow F'=0$ du sodium ou $F=3 \longleftrightarrow F'=2$ du césium. Ces transitions constituent des systèmes fermés vis-à-vis de l'émission spontanée, dont le niveau fondamental ne possède que des sous-niveaux (F_m) appartenant au même groupe $m_J = -1/2$ en champ fort. Toutefois, elles pourraient éventuellement être observées en utilisant des champs intermédiaires dans les aimants

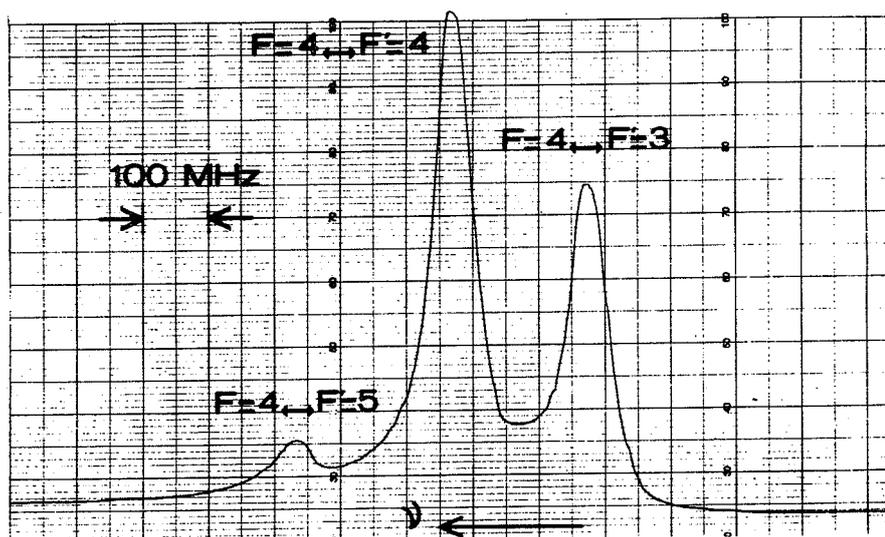


Fig. 28 - Enregistrement des composantes hyperfines de la raie D_2 du césium issues de $F=2$. Vitesse de balayage : 7 MHz/s. Constante de temps : 0,3 s.

A et B. Prenons l'exemple du césium : pour des valeurs du champ magnétique telles que $0,5 < x < 0,75$, le moment magnétique effectif du sous-niveau $F=3$, $m=-3$ et celui des autres sous-niveaux de $F=3$ sont de signe opposé (Fig. 19-a). Il est envisageable, malgré la faiblesse de la déviation produite dans les aimants pour des champs et donc des gradients aussi peu élevés, d'isoler les trajectoires associées à ce sous-niveau particulier. Mais le signal de résonance obtenu dans ces conditions serait faible.

5-2 INTENSITE DES RAIES.

5-2-1 Expression théorique.

Considérons un jet d'atomes alcalins, illuminé dans la région C par un faisceau laser monochromatique de polarisation \vec{e}_ℓ . Supposons l'appareil de Rabi réglé pour la détection des transferts $m_J \rightarrow -m_J$. L'intensité de la raie observée lorsque le laser est résonant vis-à-vis de la transition $F_0 \leftrightarrow F'_0$ est donnée par :

$$S_{\substack{\text{Rabi} \\ \vec{e}_\ell}}^{\substack{m_J \rightarrow -m_J}}(F_0, F'_0) \propto \sum_{F=F_0, F_1} \sum_{\substack{m_0 \in m_J \\ m \in -m_J}} \sum_{\lambda} |\langle F m | D_\lambda | F'_0 m' \rangle|^2 |\langle F'_0 m' | D_\ell | F_0 m_0 \rangle|^2. \quad (35)$$

Dans cette expression : $D_\ell = \vec{e}_\ell \cdot \vec{D}$ et $D_\lambda = \vec{e}_\lambda \cdot \vec{D}$, où \vec{D} est l'opérateur dipôle atomique ; la sommation sur λ s'applique à 3 directions de polarisation mutuellement orthogonales ; F_1 est le niveau hyperfin de l'état fondamental différent de F_0 ; la notation $m_0 \in m_J$ (resp. $m \in -m_J$) signifie que l'on effectue une sommation sur les niveaux Zeeman de l'état initial F_0 (resp. des états finaux $F=F_0, F_1$) appartenant à la multiplicité m_J (resp. $-m_J$) en champ magnétique fort.

Le résultat (35) est valable à faible intensité du rayonnement. Il peut être obtenu simplement en élevant au carré la somme des amplitudes de diffusion résonnante, calculées à l'ordre le plus bas, décrivant le passage d'un état combiné atome-champ $|F_0 m_0, \vec{k}_\ell, \vec{e}_\ell\rangle$ à un état $|F m, \vec{k}, \vec{e}_\lambda\rangle$ [67]. Les termes d'interférence correspondant à l'excitation cohérente de 2 états excités $|F'_0 m'_0\rangle$ de même F'_0 et de m'_0 différent s'annulent globalement¹⁾. Par ailleurs, dans les atomes alcalins que nous considérons, les écarts hyperfins de l'état excité sont supérieurs à la largeur naturelle et les termes d'interférence relatifs à 2 niveaux F'_0 et F'_1 différents sont négligeables. Le résultat (35) peut aussi être établi à partir des équations de la matrice densité (Chap. III), en calculant la modification des populations de l'état fondamental dans l'approximation linéaire.

En utilisant la décomposition tensorielle de l'opérateur dipolaire :

$$D_\lambda = \sum_{q=-1,0,1} (-1)^q (e_\lambda)_q^{(1)} D_{-q}^{(1)} \quad (36)$$

et les relations classiques de l'algèbre des moments angulaires [68], on peut encore écrire (35) sous la forme :

$$S_{e_\ell}^{\text{Rabi}} \rightarrow (F_0, F'_0) \propto \sum_{F=F_0, F_1} \sum_{\substack{m_0 \in m_J \\ m \in -m_J}} \sum_{\substack{m'_0 \\ q_\ell \\ q=-1,0,1}} (-1)^{q_\ell} (e_\ell)_{q_\ell}^{(1)} (e_\ell^*)_{-q_\ell}^{(1)} \\ \left(\begin{array}{ccc} F_0 & 1 & F'_0 \\ -m_0 & q_\ell & m'_0 \end{array} \right)^2 \Pi(F_0, F'_0) \times \left(\begin{array}{ccc} F'_0 & 1 & F \\ -m'_0 & q & m \end{array} \right)^2 \Pi(F'_0, F), \quad (37)$$

¹⁾ C'est une conséquence de l'isotropie de l'émission spontanée. Comme l'expression du signal de fluorescence totale, l'expression du signal de Rabi contient l'opérateur

$$A = \sum_{\vec{k}, \lambda} \sum_m D_\lambda |Fm\rangle \langle Fm| D_\lambda$$

qui fait intervenir une sommation sur toutes les directions du vecteur d'onde \vec{k} et toutes les polarisations \vec{e}_λ d'émission spontanée. Par son écriture même, A est un opérateur scalaire (invariant par rotation) et ne possède pas d'éléments de matrice entre 2 sous-niveaux $|F'_0 m'_0\rangle$ différents du niveau excité F'_0 .

où

$$\Pi(F, F') = \Pi(F', F) = (2F+1)(2F'+1) \left\{ \begin{matrix} \frac{1}{2} & F & I \\ F' & J' & 1 \end{matrix} \right\}^2 |\langle n^2 S, J=\frac{1}{2} \| D^{(1)} \| n^2 P, J'=\frac{1}{2} \rangle|^2 \quad (38)$$

est proportionnel à la probabilité de transition associée à la composante hyperfine $F \longleftrightarrow F'$. Les expressions (37) et (38) permettent de calculer, à l'aide de tables de symboles $3j$ et $6j$, les intensités relatives de toutes les composantes hyperfines des raies D_1 et D_2 d'un atome alcalin, pour une excitation de polarisation π parallèle à H_c ($D_\ell = D_0^{(1)}$), ou de polarisation linéaire σ perpendiculaire à H_c (par exemple $\sigma_x : D_\ell = -1/\sqrt{2} (D_1^{(1)} - D_{-1}^{(1)})$), ou encore de polarisation circulaire.

Si l'on remplace dans les expressions (35) ou (37) la seconde sommation par $\sum_{\substack{m_0 \in F_0 \\ m \in F_0, F_1}}$, on définit une quantité $S^{\text{tot}}(F_0, F'_0)$, indé-

pendante de la polarisation \vec{e}_ℓ , qui décrit "l'effet total" de la lumière. Cette quantité peut en particulier s'écrire sous la forme

$$S^{\text{tot}} = S_{1/2 \rightarrow -1/2}^{\text{Rabi}} + S_{-1/2 \rightarrow 1/2}^{\text{Rabi}} + S_{1/2 \rightarrow 1/2} + S_{-1/2 \rightarrow -1/2}, \text{ où}$$

les deux derniers termes ne contribuent pas au signal dans une détection de type Rabi. Le rapport :

$$\eta_{m_J \rightarrow -m_J}^{\vec{e}_\ell}(F_0, F'_0) = \frac{S_{m_J \rightarrow -m_J}^{\text{Rabi}}(F_0, F'_0)}{S^{\text{tot}}(F_0, F'_0)} \quad (39)$$

caractérise donc l'efficacité de la détection de type Rabi pour un réglage de l'appareil, une polarisation du rayonnement et une transition donnés. C'est ce rapport que nous avons déjà utilisé (§.4-2-2).

5-2-2 Exemple.

Considérons pour fixer les idées les deux composantes voisines $F_0=2 \leftrightarrow F'_0=1,2$ de la raie D_1 ($J'=1/2$) du sodium ($I=3/2$), un exemple que nous avons déjà utilisé et que nous retrouverons au Chapitre III. Les diagrammes de la Fig. 29 représentent, pour chacune de ces transitions et pour une polarisation linéaire π ou σ , les différents "chemins" qui contribuent au signal dans le schéma de détection $m_J=1/2 \rightarrow m_J=-1/2$. L'importance relative de ces chemins est indiquée par des nombres qui donnent la valeur (à un facteur multiplicatif près) des parties "absorption" et "émission spontanée" dans l'expression (37). Les résultats numériques correspondant à la somme

$S_{1/2 \rightarrow -1/2}^{\text{Rabi}}$ des différents chemins dans chacun des diagrammes de la Fig. 29 sont consignés dans le Tableau 2. Nous avons également fait figurer dans ce tableau les quantités $S_{-1/2 \rightarrow 1/2}^{\text{Rabi}}$ (réglage inverse de l'appareil) et $S_{\text{Sym}}^{\text{Rabi}} = S_{1/2 \rightarrow -1/2}^{\text{Rabi}} + S_{-1/2 \rightarrow 1/2}^{\text{Rabi}}$ (réglage symétrique de l'appareil). Les valeurs numériques des divers paramètres

		S^{tot}	$S_{\frac{1}{2} \rightarrow -\frac{1}{2}}^{\text{Rabi}}$	$S_{-\frac{1}{2} \rightarrow \frac{1}{2}}^{\text{Rabi}}$	$S_{\text{sym}}^{\text{Rabi}}$	$S_{2 \rightarrow 1}^{\text{hf}}$
⊙	$F=2 \leftrightarrow F'=2$	100	31,66	6,66	38,33	50
	$F=2 \leftrightarrow F'=1$	100	19,66	0	19,66	16,66
	Rapport	1	1,61		1,95	
⊙	$F=2 \leftrightarrow F'=2$	100	50,83	3,33	54,16	50
	$F=2 \leftrightarrow F'=1$	100	12,16	10	22,16	16,66
	Rapport	1	4,18		2,44	

Tableau 2

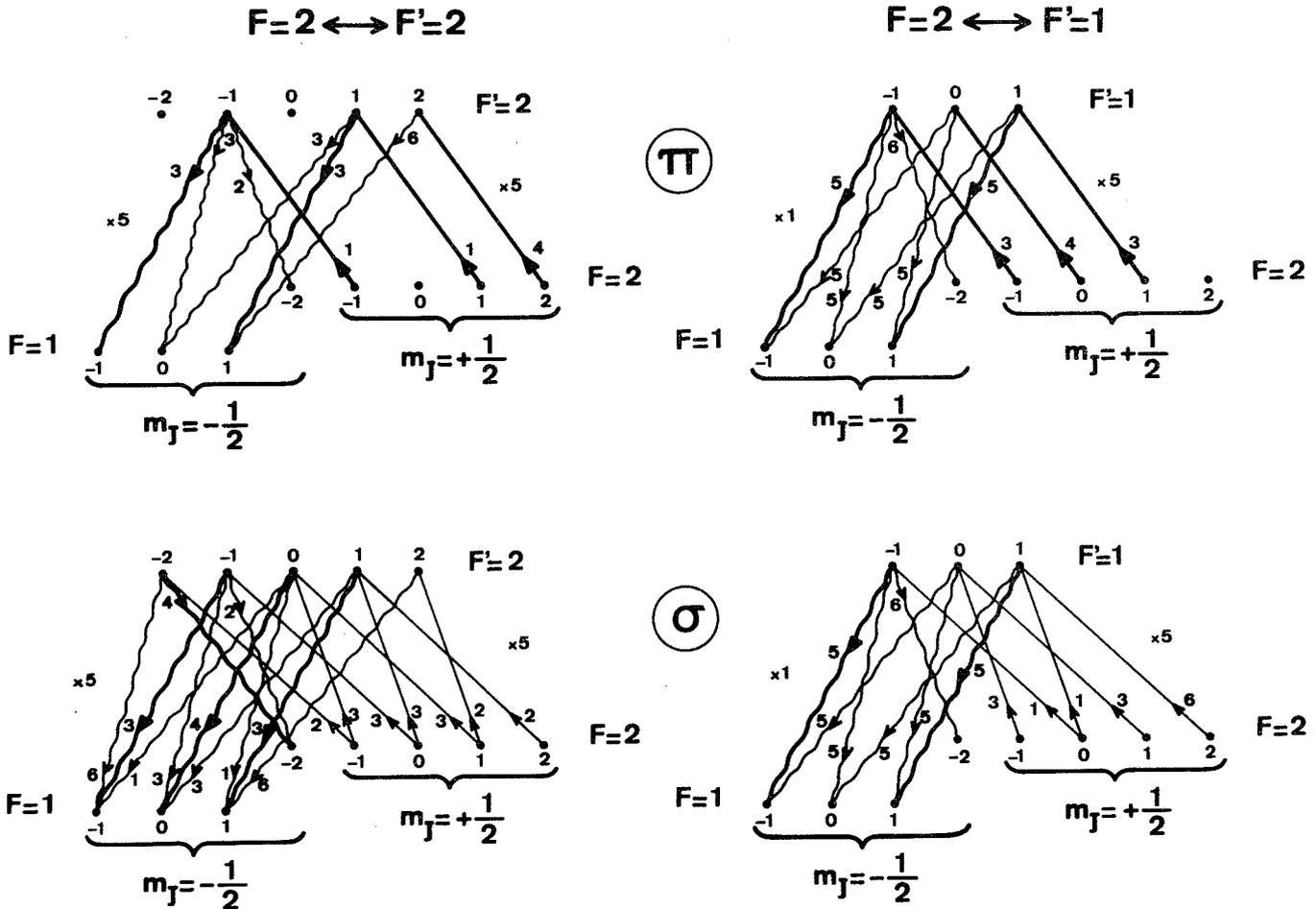


Fig. 29 - Diagrammes représentant les différents "chemins absorption-émission spontanée" permettant un transfert $m_J = 1/2 \rightarrow m_J = -1/2$ pour les transitions $F=2 \leftrightarrow F'=1,2$ de la raie D_1 du sodium et pour des polarisations de pompage linéaires π et σ .

Les processus d'absorption sont symbolisés par des traits droits, les processus d'émission spontanée par des traits ondulés. Les transitions σ sont représentées par des traits plus épais que les transitions π . Les nombres associés aux transitions Zeeman sont proportionnels aux carrés des symboles $3j$ et les nombres associés globalement aux transitions hyperfines sont proportionnels aux facteurs $\Pi(F, F')$, dans l'expression (37).

$S^{\text{Rabi}}(F_0, F'_0)$ apparaissant dans le tableau sont rapportées à une base commune $S^{\text{tot}}(F_0, F'_0) = 100$. Comme les probabilités $\Pi(F_0, F'_0)$ des transitions $F_0=2 \longleftrightarrow F'_0=1,2$ sont égales (Fig. 14), la valeur de $S^{\text{tot}}(F_0, F'_0)$ est la même pour ces deux transitions.

Le tableau 2 fournit les valeurs relatives des intensités en détection de type Rabi des raies $F=2 \longleftrightarrow F'=1$ et $F=2 \longleftrightarrow F'=2$, qui ont une intensité égale en détection optique. On remarque l'influence importante de la polarisation du rayonnement. Le fait que les intensités soient bien plus grandes dans le schéma de détection $m_J = 1/2 \rightarrow m_J = -1/2$ que dans le schéma inverse est dû à ce que nous avons pris l'exemple de transitions issues du niveau $F=2$; cela sera discuté dans le paragraphe suivant, en liaison avec le pompage hyperfin. Le rapport des intensités (2, 44) prévu pour une polarisation σ et un réglage symétrique est en accord avec l'observation expérimentale (Fig. 27-a). Le Tableau 2 fournit également le paramètre η , qui caractérise chaque transition de façon absolue. Dans notre exemple, on voit que ce paramètre varie entre des valeurs $\eta \simeq 1/5$ (transition $F=2 \longleftrightarrow F'=1$ en polarisation π) et $\eta \simeq 1/2$ (transition $F=2 \longleftrightarrow F'=2$ en polarisation σ), approximativement les mêmes pour un réglage $m_J = 1/2 \rightarrow m_J = -1/2$ ou pour un réglage symétrique.

5-2-3 Lien avec le pompage hyperfin.

Dans les atomes alcalins, dont l'état fondamental a pour moment angulaire $J=1/2$, on peut associer à chacun des deux niveaux hyperfins une valeur du nombre quantique m_J en champ fort. Ainsi, dans le cas du césium ou celui du sodium (moment nucléaire positif), tous les niveaux Zeeman appartenant au groupe $m_J = +1/2$ en champ fort sont issus du niveau $F=I+1/2$, alors que tous les niveaux du groupe $m_J = -1/2$ en champ fort sont issus du niveau $F=I-1/2$ à l'exception d'un seul : le niveau $m = -(I+1/2)$ de $F=I+1/2$. Le pompage $m_J = 1/2 \rightarrow m_J = -1/2$ (resp. $m_J = -1/2 \rightarrow m_J = 1/2$) est donc étroitement lié au pompage hyperfin $F=I+1/2 \rightarrow F=I-1/2$ (resp. $F=I-1/2 \rightarrow F=I+1/2$).

Introduisons pour caractériser le pompage optique hyperfin une nouvelle quantité $S_{F_0 \rightarrow F_1}^{\text{Hf}}(F_0, F'_0)$ qui est cette fois obtenue en remplaçant dans les expressions (35) ou (37) les deux premières sommations par $\delta(F, F_1) \sum_{\substack{m_0 \in F_0 \\ m \in F_1}}$. La sommation sur m et q conduit alors au résultat $1/(2F'_0+1)$ indépendant de m'_0 et la sommation sur m_0 et m'_0 au résultat $1/3$ indépendant de q_0 :

$$S_{F_0 \rightarrow F_1}^{\text{Hf}}(F_0, F'_0) \propto \frac{1}{3} \Pi(F_0, F'_0) \times \frac{1}{2F'_0+1} \Pi(F'_0, F_1) . \quad (40)$$

L'expression (40) fournit un moyen très simple de calculer les intensités en détection de type Rabi. Plutôt que de faire la somme de tous les chemins contenus dans $S_{1/2 \rightarrow -1/2}^{\text{Rabi}}(F_0 = I+1/2, F'_0)$, il suffit de retrancher le chemin issu de $m_0 = -(I+1/2)$ et d'ajouter les chemins aboutissant à $m = -(I+1/2)$ dans la quantité facilement calculable $S_{I+1/2 \rightarrow I-1/2}^{\text{Hf}}(F_0 = I+1/2, F'_0)$. Un raisonnement analogue s'applique aux transferts $m_J = -1/2 \rightarrow m_J = 1/2$ et $F = I-1/2 \rightarrow F = I+1/2$. Les deux quantités sont d'autant plus voisines que I est élevé (ce qui est le cas pour le césium). Dans le cas du sodium, nous avons reporté les paramètres $S_{F=2 \rightarrow F=1}^{\text{Hf}}$ caractérisant les transitions $F=2 \leftrightarrow F'=1, 2$ dans la dernière colonne du Tableau 2.

Les transitions les plus favorisées en détection optique, parce qu'elles ne subissent pas de pompage hyperfin, ont les intensités les plus faibles (parfois nulles) en détection de type Rabi. Aussi, comme le montrent dans ce mémoire de nombreux exemples, l'allure du spectre d'un même groupe de composantes hyperfines est très différente d'un type de détection à l'autre. Alors que dans la méthode de détection par fluorescence le pompage hyperfin ne se manifestait que par une modification des intensités relatives des raies (Sect. A), il contribue ici directement au signal. Les intensités observées en détection de type Rabi peuvent donc être utilisées comme un test expérimental du pompage hyperfin de l'état fondamental.

5-3 ELARGISSEMENT RADIATIF.

Nous avons reproduit sur la Figure 30 une série d'enregistrements à forte intensité lumineuse des composantes $F=2 \longleftrightarrow F'=1, 2$ de la raie D_1 . La puissance du faisceau laser était de 20 mW. La puissance par unité de surface du rayonnement ($P_0 \approx 0,65 \text{ W/cm}^2$ ou une fraction de P_0) était donc approximativement la même que pour les enregistrements des mêmes composantes en détection par fluorescence (Fig. 12-c). La largeur des raies est ici plus grande et leur profil est mieux défini, en particulier dans les parties éloignées des ailes. En effet, une technique de détection non-optique offre l'avantage de ne pas être sensible à la lumière diffusée qui, dans le cas de faisceaux laser très intenses, peut créer un fond irrégulier dans les spectres obtenus par une technique de détection optique.

La Figure 31 montre un exemple d'ajustement par moindres carrés ¹⁾ d'un profil théorique constitué de 2 composantes purement lorentziennes à un profil expérimental enregistré à la puissance P_0 . Le bon accord obtenu indique que, pour de telles intensités lumineuses, la contribution gaussienne à la largeur (effet Doppler) est très faible devant la contribution lorentzienne. Nous avons effectué une reconstitution analogue des 3 profils expérimentaux de la Figure 30. Nous avons reporté sur la Fig. 32 le carré de la largeur γ' ainsi obtenue pour chacune des 2 composantes, en fonction de la densité de puissance P du rayonnement. Les droites ont été tracées de façon à passer par le point $\gamma'^2 = \gamma^2$ (γ largeur naturelle) pour $P=0$. On voit que la relation linéaire est bien vérifiée par les 3 premiers points. Cependant, les points obtenus pour la puissance maximale $P = P_0$ se trouvent au-dessus de chacune des droites. Cet effet est probablement dû à ce que les

1) Les reconstitutions de profil ont été effectuées sur ordinateur par P. Luc.

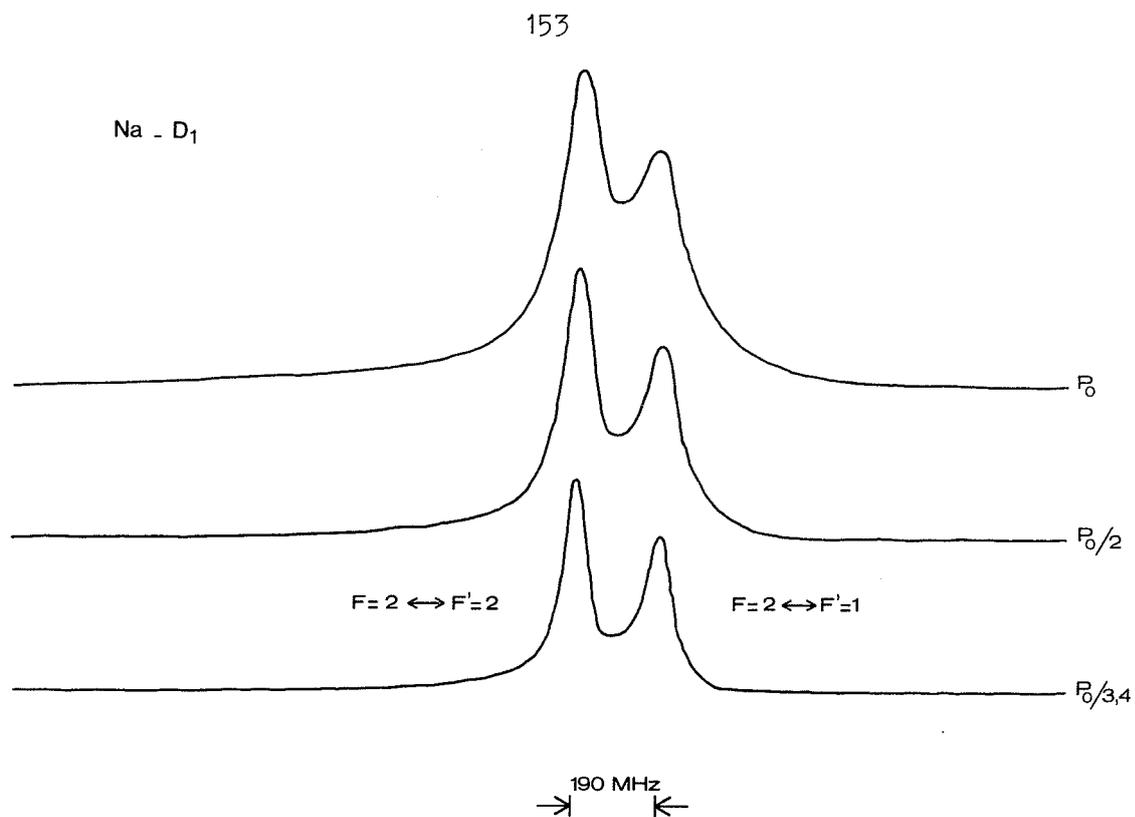


Fig. 30 - Profils expérimentaux du groupe des composantes de la raie D₁ du sodium issues de F=2, pour diverses intensités du rayonnement (P₀ ≈ 0,65 W/cm²).

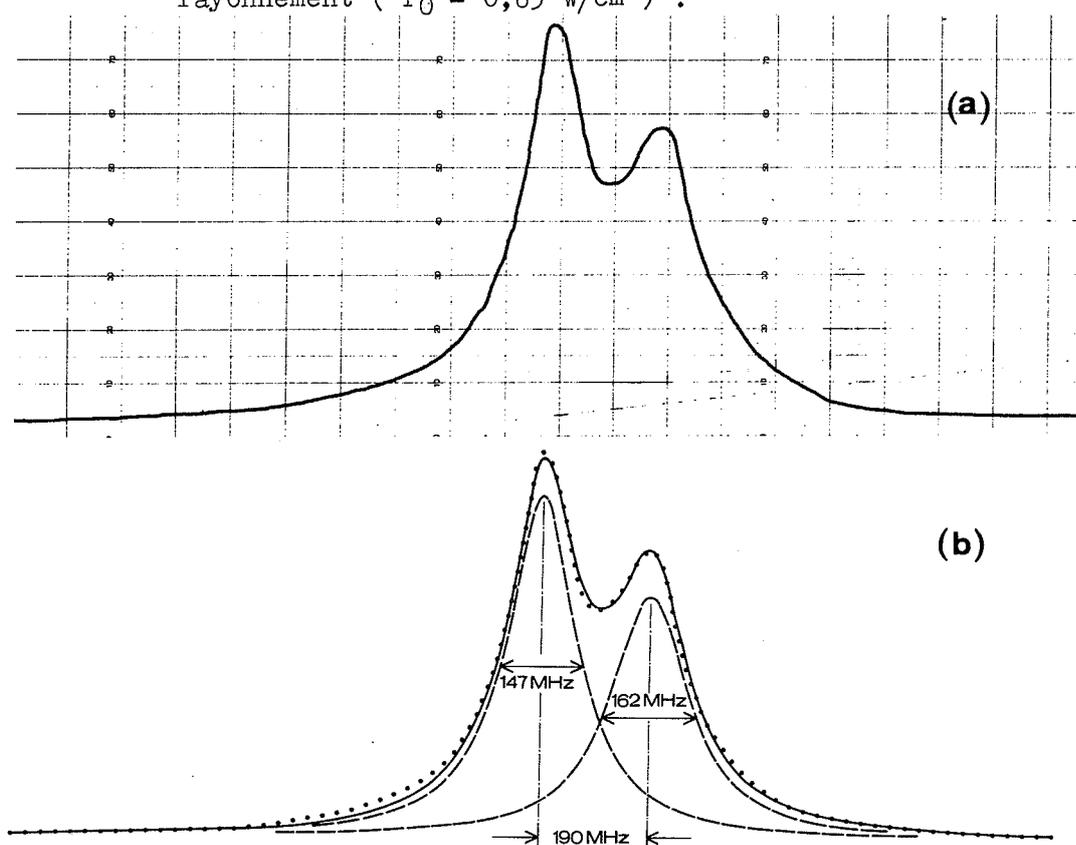


Fig. 31 - (a) Enregistrement des composantes de la raie D₁ issues de F=2 (P ≈ 0,65 W/cm²) ; (b) Reconstitution de ce profil expérimental (points) par un profil théorique (trait continu) somme de 2 raies lorentziennes (trait interrompu).

deux composantes ne peuvent plus alors être considérées comme indépendantes, leur largeur : 162 MHz pour $F=2 \leftrightarrow F'=1$ et 148 MHz pour $F=2 \leftrightarrow F'=2$ devenant proche de leur distance de 190 MHz.

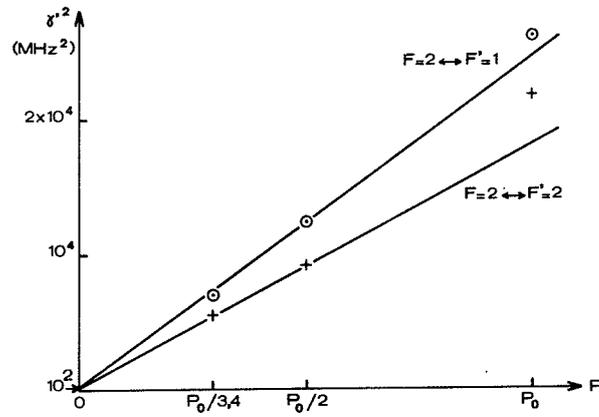


Fig. 32 - Carré des largeurs γ' de chacune des 2 composantes des profils expérimentaux de la Figure 30 en fonction de la densité de puissance du rayonnement.

C - LA METHODE DE PHOTO - DEVIATION





1 - MISE EN EVIDENCE ET ETUDE EXPERIMENTALE DE LA PHOTO-DEVIATION.

Titre de l'article : Déviation et élargissement d'un jet atomique par effet de recul accompagnant l'absorption et l'émission d'un photon.

Résumé : Nous avons clairement mis en évidence la déviation d'un jet atomique illuminé transversalement par un rayonnement résonnant. Le principe de l'expérience est très simple : lors de l'absorption résonnante d'un photon de fréquence ν , un atome acquiert une quantité de mouvement transversale $h\nu/c$. Il en résulte pour un atome de vitesse thermique une déviation de l'ordre de 10^{-5} radians.

Notre expérience a été effectuée sur des jets de sodium et de césium. La collimation et la détection du jet atomique étaient assurées respectivement par 2 fentes de largeur $10 \mu\text{m}$ distantes de 30 cm et par un fil de tungstène de diamètre $10 \mu\text{m}$. Les atomes étaient éclairés par de la lumière de résonance fournie par des lampes spectrales. Dans ces conditions, le nombre moyen d'absorptions subies par un atome ne dépassait pas quelques unités. Mais grâce à la grande largeur spectrale du rayonnement (supérieure à la structure hyperfine de l'état fondamental), tous les atomes pouvaient être déviés.

En réalité, nous avons observé à la fois un déplacement et un élargissement de la distribution spatiale des atomes du jet. En effet, un atome n'acquiert globalement de quantité de mouvement lors de l'absorption d'un photon que si celle-ci est suivie d'émission spontanée (et non d'émission induite). L'émission spontanée lui transfère une quantité de mouvement transversale de valeur moyenne nulle, mais pouvant prendre avec une égale probabilité toutes les valeurs comprises entre $-h\nu/c$ et $h\nu/c$. Nous avons d'ailleurs pu isoler l'effet de l'émission spontanée et vérifier son isotropie : en illuminant le jet dans le plan contenant les fentes et le détecteur, nous avons observé un élargissement symétrique de la distribution des atomes.



ATOMIC-BEAM DEFLECTION AND BROADENING BY RECOILS DUE TO PHOTON ABSORPTION OR EMISSION

J.-L. PICQUÉ and J.-L. VIALLE

Laboratoire Aimé Cotton, C.N.R.S. II, 91 - Orsay, France

Received 10 May 1972

An atomic-beam experiment, based on momentum transfer between photons and atoms during resonant interaction, is described. Curves providing the first direct experimental evidence in the optical region of the isotropic recoil effect in spontaneous emission, have been obtained. Other curves show the possibility of deflecting an atomic beam with sufficient efficiency to give a new method of detection of optical resonance. Some spectroscopic applications, also valid for atoms with a diamagnetic ground state, are considered.

In this paper we describe an atomic-beam deflection experiment based on exchange of momentum during resonant interaction with light. The experiment was carried out several decades ago by Frisch, who stated at the end of his publication [1] that the experiment should be repeated in order to obtain "clearer and more conclusive results". Indeed, we have observed a clearer deflection of a transversely illuminated beam by the resonance light and, furthermore, we have isolated the only effect of spontaneous emission; the use of a light element (sodium) and of a heavy element (cesium) enables comparisons to be made. Recently, Ashkin suggested the use of radiation pressure to produce, under saturation conditions, a constant central force field acting on an atomic beam [2]. Our experiment does not reach these conditions, as we have used classical light sources, emitting mainly D_1 and D_2 lines.

When absorption of a photon with frequency ν takes place, the atom acquires a linear momentum $p = h\nu/c$ in the direction of this photon. Consecutively, a new photon can be re-emitted in two different ways: by stimulated emission, in which case the atom takes a recoil momentum opposite to the previous one, and its trajectory is only subjected to a very weak translation; by spontaneous emission, in which case the recoil momentum of magnitude p is scattered in random directions. The "effective processes" contributing to the de-

flection of a beam consist then in an absorption followed by a spontaneous emission. The angle of deviation corresponding to the transfer of the transverse momentum p to an atom of mass m and velocity v is $\alpha = p/mv$; this is typically of the order of 10^{-5} radians. The smallness of this angle explains the need for the use of a very well-defined beam direction, and a very narrow detector.

Our apparatus (fig. 1) comprises, at one end, a copper oven with a slit 100 microns wide and, at the other end, a surface ionization detector consisting of a wolfram wire of 10 microns diameter, run red hot. The hot wire can be moved transversely, controlled by a micrometer graduated in microns. The beam collimation is made with the use of two slits F_1 and F_2 , 30 cm apart: the first one, with a fixed width of 10 microns, can be translated as a unit; the jaws of the second one can be moved separately, allowing the maximum aperture of 10 microns used in the experiment. The slits F_1 and F_2 are put on rotatable mountings. All these motions are carried out in a reproducible and measurable way with the use of a micrometer screw. Next to the slit F_2 is a glass tube that allows the illumination of the atoms by three spectral lamps: these are placed between 70 and 55 cm from the detector and at less than 2 cm from the beam axis. Three main diffusion pumps, shown in fig. 1, maintain a pressure of 1 to

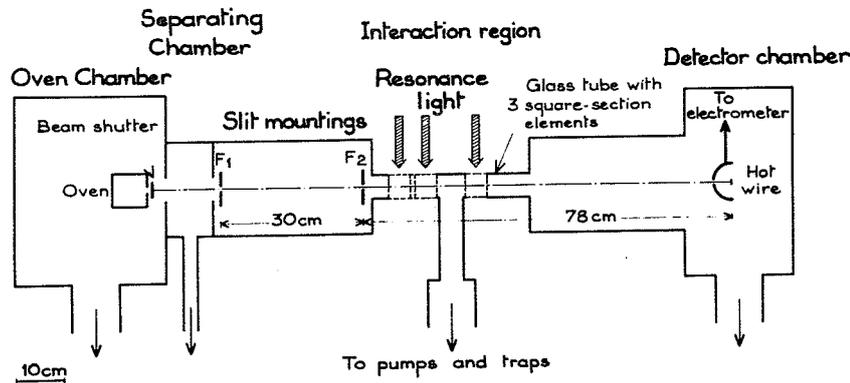


Fig. 1. Schematic diagram of the atomic-beam apparatus.

3×10^{-7} torr in the different parts of the apparatus.

As in other atomic-beam experiments [3], the different elements determining the axis of the beam were first aligned with a telescope, then with the help of the beam itself. The hot wire being taken as a point of reference, the direction of the two slits and the position of the slit F_1 had to be adjusted by systematic trials so that the three elements were as colinear and as parallel as possible. The optimum alignment, very sharp with respect to rotations of the slits, corresponded obviously to the maximum of the top of the "beam shape" (distribution of the number of detected atoms as a function of the transverse position of the detector) and to the minimum width of this distribution. The narrowness of the beam could then be adjusted by symmetrical displacement of the jaws of the slit F_2 .

In the limit when the detector is infinitely narrow, the undeflected beam shape would be trapezoidal [3], with a width at half maximum of 36 microns for a width of the two collimating slits equal to 10 microns. The deflected beam shape should be broadened for several reasons: the angular spread of the velocities of the atoms and principally of the light rays, the maxwellian beam velocity distribution. Another broadening factor is fundamental in origin: that is the spherical symmetry of spontaneous emission. The component of the recoil momentum along a given axis, imparted to the atom upon spontaneous emission, can have all values between $-p$ and $+p$.

We carried out the experiment with sodium and cesium atomic beams, produced respectively at temperatures of 360°C and 200°C , providing equivalent inten-

sities. The deflection $\delta = (h/\lambda m \bar{v})d$ at the distance d , associated with a photon absorption by an atom moving with the average velocity in the beam is then, if $d = 70$ cm, 23 microns for sodium ($\bar{v} = 900$ m/sec), 7.5 microns for cesium ($\bar{v} = 320$ m/sec). Figs. 2 and 3 show, in the case of these two elements, the shape of the direct beam and the shape of the beam deflected when irradiated in the plane orthogonal to the height of the slits. The signal measurements were carried out

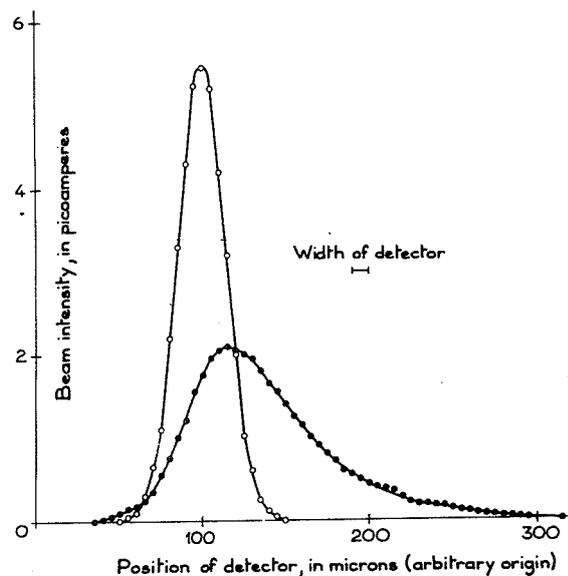


Fig. 2. Sodium beam shape, \circ before illumination, \bullet deflected by resonance light.

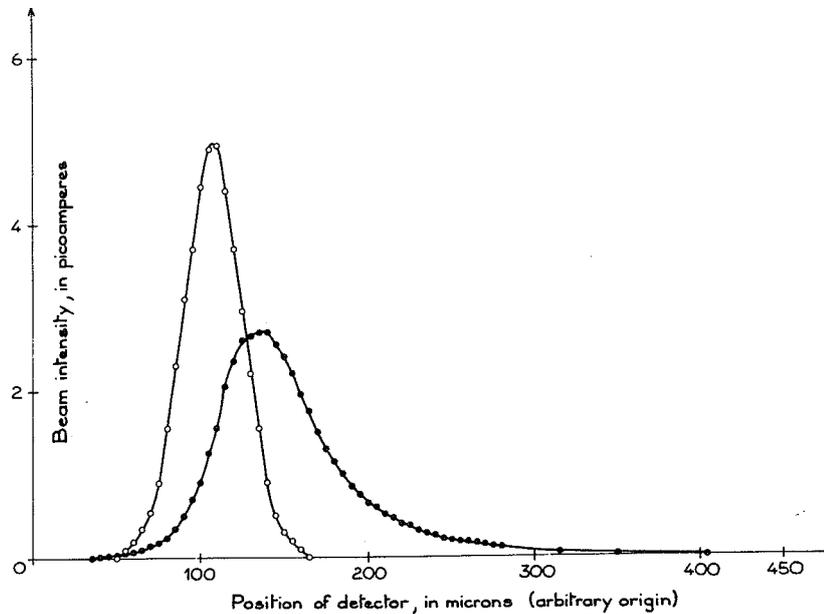


Fig. 3. Cesium beam shape, \circ before illumination, \bullet deflected by resonance light.

successively with the resonance light on and then off, in each position of the detector, at steps of 5 microns. The undeflected beam intensity pattern is slightly rounded because of the appreciable width of the detector, but its width (30 to 40 microns according to the experiments) is not greater than the expected theoretical value. The deflected beam exhibits an asymmetrical shape clearly distinct from the one of the direct beam. The decrease in signal induced by the light at the centre of the undeflected distribution is 68% for sodium and 72% for cesium. The slight overlapping in the left wings of the curves comes from the light rays with smaller inclination with respect to the beam axis. The displacement between the average values of the two distributions is 36 microns for sodium and 46 microns for cesium; that is, in taking δ as the unit: 1.5 in the case of sodium against 6 in the case of cesium. That is, related to the light intensity used in beam excitation, greater with the cesium vapor lamps (electrodeless discharge lamps [4]) than with the sodium vapor lamps (Philips commercial lamps). In using the same light sources in a Rabi-type atomic-beam experiment [5], we had noted previously an absorption signal greater for cesium by a factor of the order of 10, for an equal beam density and thickness. Fig. 4 shows

the modification of the sodium beam shape when irradiating the atoms in the plane that contains the two slits and the detector. Under these conditions, we only observe the broadening due to the isotropic recoil effect in spontaneous emission; the absorption, which deflects the atoms in the symmetry plane, no longer has an observable effect. The broadened curve remains symmetrical and its axis does not differ from that of the initial curve. The broadening is naturally accompanied by a reduction of the maximum (of 39%) and a raising of the bottom of the distribution. Moreover, one can verify that the area under each pair of curves in figs. 2, 3 and 4 is the same, which simply expresses the conservation of the number of atoms.

Simple arguments based on the Einstein coefficients A and B give an estimate of the number of "effective processes" occurring to an atom per unit time: $N = 1/\tau (kx + 1)$, where x , saturation parameter, is an effective value related to the ratio $x(\nu) = Bw(\nu)/A$, $w(\nu)$ is the spectral energy density per unit volume at frequency ν ; τ is the radiative lifetime of the resonance level; $k = 1 + g_1/g_2$ depends on the degeneracy factor for the lower and upper states. The number of "effective processes" which take place on the average in the interaction region of length l is then $n = N l/\bar{\nu}$. To

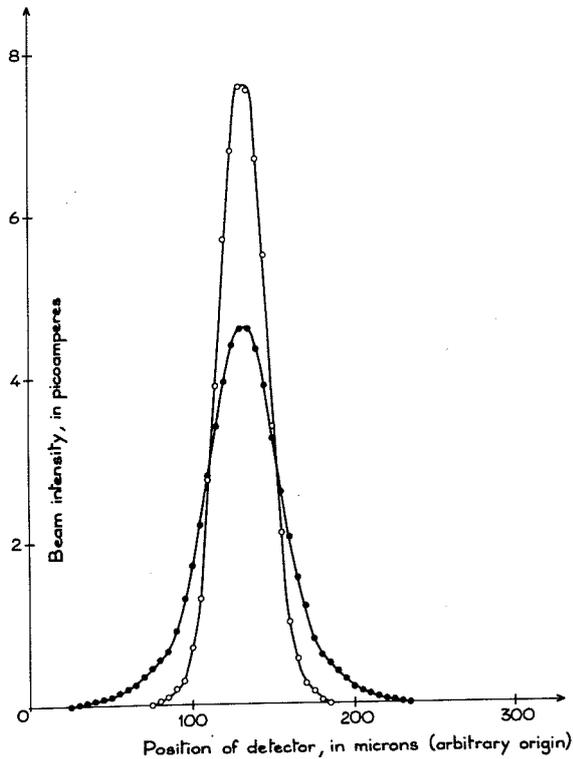


Fig. 4. Sodium beam shape, \circ before illumination; \bullet broadened by resonance light.

estimate x , the solid angle intercepted by the illuminated beam area has to be taken into account (the angular spread of the light rays is large in the direction of the beam, but the rays with small inclination with respect to the beam axis are less efficient), and also the high collimation of the beam: if Γ is the Doppler width of the lines emitted by the source and γ their natural width, the beam only absorbs a fraction of the order of γ/Γ of the light which irradiates it. By taking for each one of the three lamps a forward photon flux of 10^{17} photons per second [4], we obtain $n \approx 1$, in reasonable agreement with the experimental observations. Let us suppose that one illuminates the beam perpendicularly with the beam emitted by a dye laser, operating in single mode (of 40 mW intensity) interacting selectively with a two-level hyperfine system included in one of the two resonance lines [2]: a stability of 180 MHz [6] would be sufficient for this mode

so that the energy which is contained on the average in the absorption band would be such that $x \approx 1$ ($2/3$ of the saturation) and $n \approx 75$; but only a fraction of the atoms would be influenced.

The deflection technique of an atomic beam by resonant collisions with photons can be considered as a new means, very simple in principle, of detecting optical resonance. The resonance signal would consist in the reduction of the number of detected atoms in the presence of transverse irradiation, the detector remaining at the centre of the direct beam. Another technique has already been exploited [7], based on the model of Rabi-type magnetic resonance experiments using two inhomogeneous magnetic fields: in the central region of the apparatus, the resonance radiation plays the part of the radiofrequency field in causing a change in the magnetic moment in the ground state of a part of the atoms which have been excited, and consequently a change in their trajectory. The main disadvantage of the new method comes from the extreme narrowness of the beam (at least to the extent that no highly intense radiation is used, which would permit the widening of the slits): for the same element (sodium) and the same light source, if the resonance signal were extrapolated (to the same number of atoms coming out of the oven and to the same number of lamps situated at the same distance from the beam), it would be about 10^{10} atoms per second in a "flop-in" experiment [5], against 2×10^7 atoms per second (fig. 2). But, on the other hand, the new method presents the advantage of being usable for the atoms without resulting electronic magnetic moment in the ground state*.

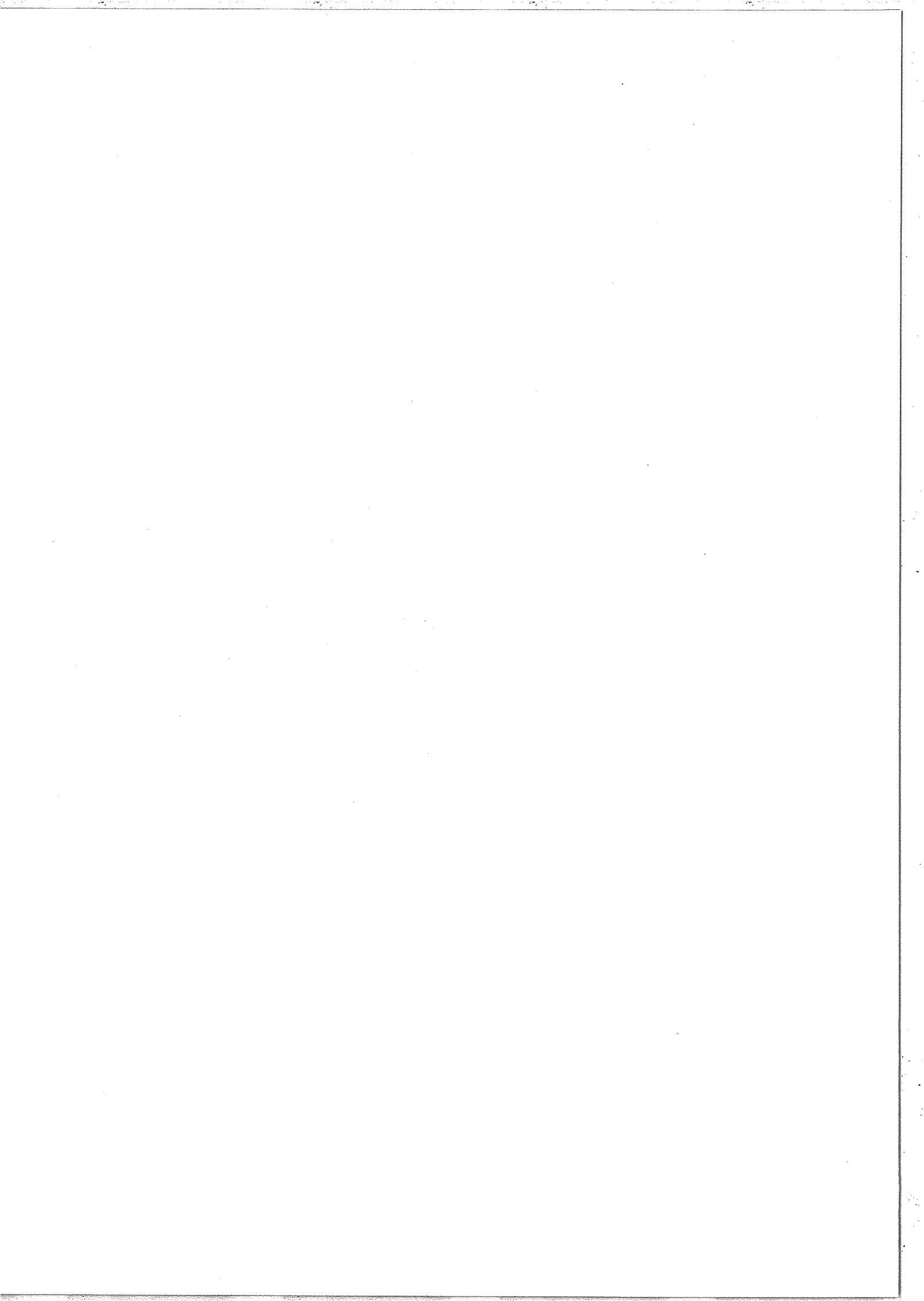
In spite of the recent development of techniques using saturated absorption, which also allows us to avoid Doppler effect, the atomic-beam methods with detection on the atoms remain of interest in optical spectroscopy, especially for work with radioisotopes. But these spectroscopic applications (high-resolution measurements of isotope shifts and hyperfine structures of excited levels by selective optical absorption), the precision of which is in theory only limited by the natural linewidth, imply the use of a spectral band of

* For some of these atoms which can return to paramagnetic states after optical excitation, a magnetic deflection method is also possible [8].

light energy that would be at the same time narrow, stable in frequency and sufficiently intense. A systematic application supposes then the use of lasers satisfying these conditions and having tunable frequency over a broad range.

References

- [1] R. Frisch, *Z. Physik* 86 (1933) 42.
- [2] A. Ashkin, *Phys. Rev. Letters* 25 (1970) 1321.
- [3] N.F. Ramsey, *Molecular beams* (Clarendon Press, Oxford, 1969).
- [4] W.E. Bell, A.L. Bloom and J. Lynch, *Rev. Sci. Instr.* 32 (1961) 688.
- [5] H.T. Duong and J.L. Picqué, *J. Phys. (Paris)* 33 (1972), to be published.
- [6] M. Hercher and H.A. Pike, *Opt. Commun.* 3 (1971) 346.
- [7] R. Marrus and D. M. McColm, *Phys. Rev. Letters* 15 (1965) 813;
R. Marrus, E. Wang and J. Yellin, *Phys. Rev. Letters* 19 (1967) 1.
- [8] H. H. Stroke, *Comm. Atom. Mol. Phys.* 3, 69, 167 (1972).



2 - APPLICATION SPECTROSCOPIQUE DE LA PHOTO-DEVIATION

Titre de l'article : Application de la déviation d'un jet atomique par un rayonnement optique résonnant à la spectroscopie à haute résolution.

Résumé : Lorsqu'on illumine un jet atomique bien collimaté par un rayonnement incident à angle droit, le jet atomique est à résonance dévié par pression de radiation. Le signal fourni par un détecteur suffisamment étroit, placé sur l'axe du jet non défléchi, diminue alors. Si l'on dispose d'un rayonnement monochromatique accordable, on peut en enregistrant ce signal en fonction de la fréquence du rayonnement reproduire sans élargissement Doppler le spectre d'absorption des atomes.

Nous avons testé cette méthode de spectroscopie à haute résolution sur l'exemple des raies de résonance d'un jet de sodium excité par un laser à colorant monomode. L'intensité du faisceau lumineux était assez faible pour que chaque atome ne soit excité qu'environ 1 fois en moyenne (on évitait ainsi les déformations du spectre par pompage hyperfin et élargissement radiatif). Dans des conditions, la collimation du jet devait être élevée (de l'ordre de 10^4). Les intensités des composantes hyperfines observées suivent approximativement les probabilités de transition relatives.



HIGH RESOLUTION SPECTROSCOPIC APPLICATION OF ATOMIC BEAM DEFLECTION BY RESONANT LIGHT

P. JACQUINOT, S. LIBERMAN, J.-L. PICQUÉ and J. PINARD

Laboratoire Aimé Cotton, C.N.R.S. II, 91405-Orsay, France

Received 16 April 1973

The first spectroscopic application of the technique of detection of optical resonance using atomic beam deflection by light, is described. A test has been performed on the hyperfine structure of the sodium resonance lines, and shows that the method allows a very high resolution. The atomic beam is excited by a cw single mode dye laser with tunable frequency.

We describe in this letter an investigation of the hyperfine structure of the sodium resonance lines, using the deflection of an atomic beam by resonant light. The atomic beam is excited by a cw single mode dye laser providing a continuous tunability, a small linewidth and a good frequency stability.

The use of an atomic beam of very high collimation allows the effect of exchange of linear momentum between the atoms and a resonant radiation field to be observed. The transversely illuminated atoms are deflected through the processes of absorption followed by spontaneous emission. That leads, at optical resonance, to a modification of the spatial distribution of atoms at the detector, as was clearly shown in a recent work performed in our laboratory [1]. In that experiment, the atomic beam was irradiated using the whole spectral profile of the resonance lines emitted by discharge lamps. Another experiment showing the deflection has been done with a laser [2].

We reported recently an ultra high resolution spectroscopic experiment using the Rabi type method for detecting the optical resonance of a sodium atomic beam [3]. The beam was illuminated by a tunable cw dye laser allowing a selective excitation of the hyperfine components of the D_1 and D_2 lines of sodium. In the present work, we use the same laser in order to test the spectroscopic application of the technique of deflection by light. On single mode operation, this dye laser has an output power of a few hundred μW .

The frequency can be continuously tuned over a range of 10 000 MHz. The linewidth that we obtained in the previous experiment [3] demonstrated that the amplitude of frequency fluctuations of the laser mode is smaller than 15 MHz. A detailed description of our laser cavity and our servo-control system will be published shortly.

The geometry of the atomic beam is identical to that used in ref. [1]. For one excitation, the average deflection at the detector of atoms moving with the average velocity in the beam is 23 μm . The aperture of the two collimating slits, 30 cm apart, has been chosen to be 20 μm . Thus, the collimation ratio is greater than 10^4 , which makes the Doppler effect completely negligible for an irradiation strictly perpendicular to the beam axis.

The resonance signal consists in the reduction of the number of detected atoms in the presence of radiation, the detector remaining at the center of the undeflected beam shape. The atoms are excited from either of the two hyperfine levels of the ground state $3^2S_{1/2}$. Thus, the resonance signal cannot exceed the fraction of atoms affected by the interaction (according to the statistical weights: $\frac{3}{8}$ for pumping from the hyperfine level $F = 1$, $\frac{5}{8}$ for pumping from $F = 2$). Both the recording of the deflected beam profile and a calculation using the known laser intensity, indicate that the atoms undergo at most a few deflecting processes when the laser is tuned to a hyperfine transition.

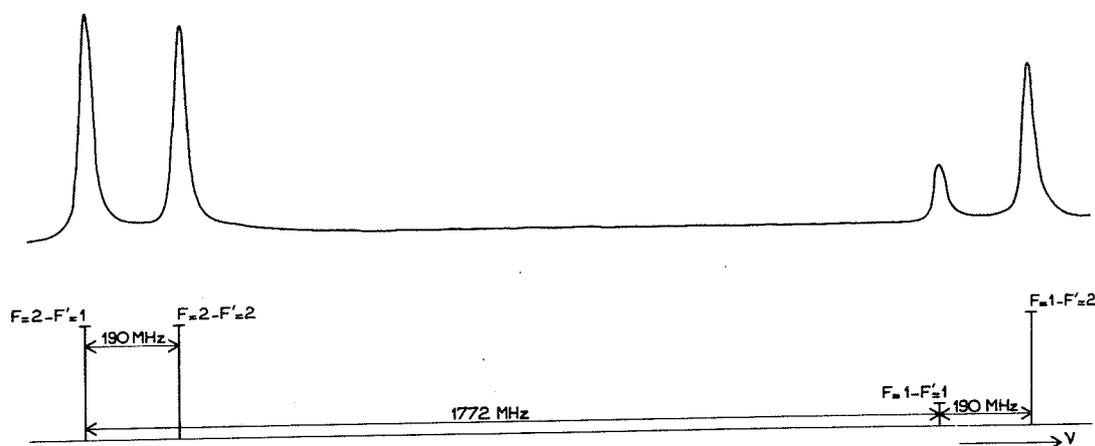


Fig. 1. Hyperfine structure of the D_1 line. F and F' denote the hyperfine levels of the $^2S_{1/2}$ and $^2P_{1/2}$ states respectively.

Owing to the beam collimation and the hot-wire width ($10\ \mu\text{m}$), this should be enough to saturate our flop-out signal, which occurs when all the atoms concerned in the excitation are shifted out of the detector. We have experimentally observed a flop-out signal of the order of 10^7 atoms per second.

Typical recordings are shown in fig. 1 (D_1 line) and fig. 2 (D_2 line); we also indicate the known values of hyperfine splittings, determined by radiofrequency or level crossing techniques (see references cited in ref. [3]), as well as the theoretical relative intensities of the transitions. Fig. 1 shows the complete hyperfine structure of the D_1 line, obtained by a continuous scanning of the laser frequency through about 2000 MHz. The recorded linewidth is 30 MHz. This linewidth is essentially due to the natural linewidth and to the residual Doppler effect arising from the focusing of the laser beam onto the atomic beam. The resolution is not sufficient to separate the transitions $^2S_{1/2}, F=1 \leftrightarrow ^2P_{3/2}, F'=0-1$ (fig. 2), whose frequencies are very close (15 MHz) and whose intensities are very different.

The intensities which we have recorded are quite similar to the natural intensities (figs. 1, 2). But in a more general situation, the experimental intensities would be more perturbed. An important effect is the possibility for the atom to fall into a hyperfine level different from the original one. In that case, which may occur in the observation of the excited levels with $F'=1$ and $F'=2$, the atom is lost for further

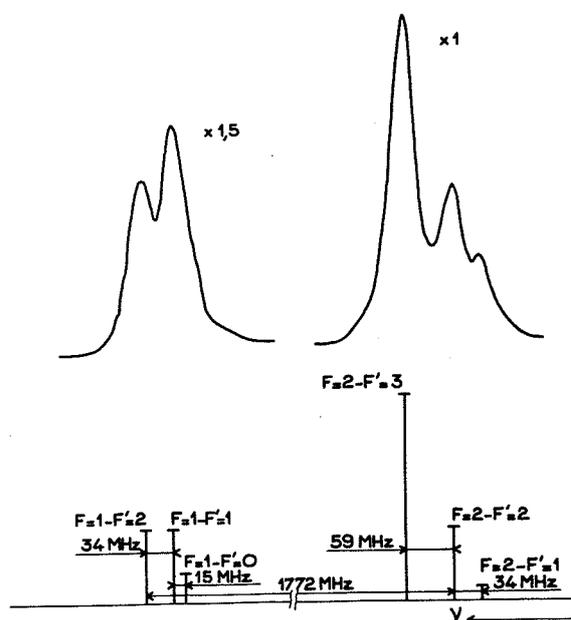


Fig. 2. Hyperfine structure of the D_2 line. The frequency scale is interrupted.

excitations. Thus, our results indicate that we are near the limiting situation in which each atom would undergo a single excitation that would certainly remove it from the detector.

In conclusion, we have demonstrated a new atomic beam method for optical spectroscopy. This method detects the optical resonance by changes in the behaviour of the atoms themselves, as does the Rabi type method [3]; but the present method can be used for atoms with a diamagnetic ground state. In these two methods, the use of an atomic beam almost completely avoids the Doppler broadening; this has also been obtained by observing the fluorescent light scattered by a beam [4]. But the techniques which use the atoms for detection should be more sensitive, and then better suited for studies involving radioactive isotopes. By comparison with the methods without Doppler broadening utilizing an atomic vapor, such as saturated absorption spectroscopy [5], the atomic

beam techniques have the advantage of being free of collisional broadening or cross-over resonances (which may occur between two transitions sharing a common level).

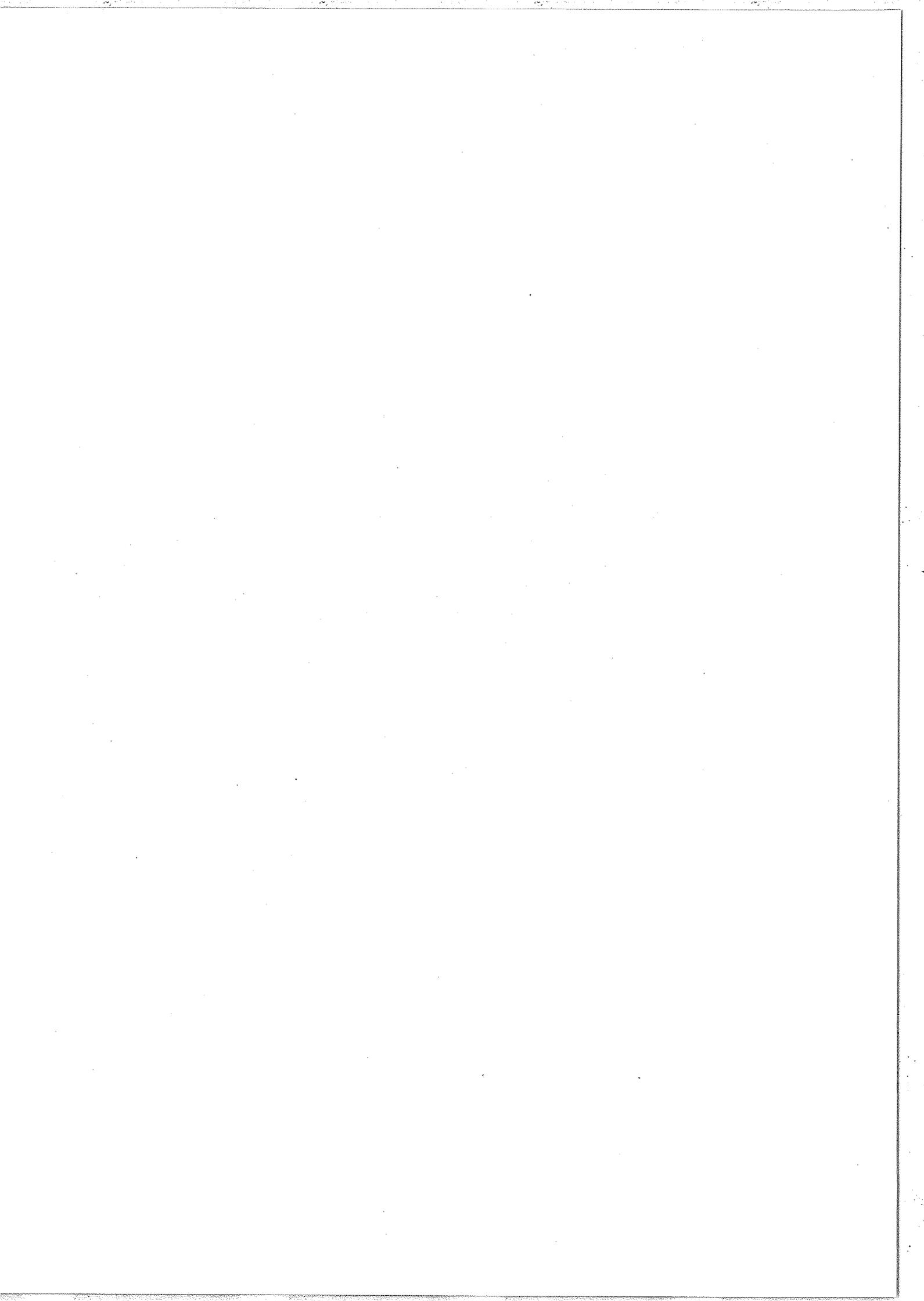
References

- [1] J.L. Picqué and J.L. Vialle, *Opt. Commun.* 5 (1972) 402.
- [2] R. Schieder, H. Walther and L. Wöste, *Opt. Commun.* 5 (1972) 337.
- [3] H.T. Duong, P. Jacquinet, S. Liberman, J.L. Picqué, J. Pinard and J.L. Vialle, *Opt. Commun.* 7 (1973) 371.
- [4] W. Hartig and H. Walther, *Appl. Phys.*, to be published.
- [5] T.W. Hänsch, I.S. Shahin and A.L. Schawlow, *Phys. Rev. Letters* 27 (1971) 707.

CLASSIFICATION DES METHODES DE
SPECTROSCOPIQUE OPTIQUE "SANS EFFET DOPPLER".

Pour conclure ce chapitre, nous tentons dans le tableau ci-contre de situer les méthodes de spectroscopie par jet atomique et rayonnement monochromatique accordable dans l'ensemble des méthodes de spectroscopie optique à haute résolution (dont la résolution est seulement limitée par la largeur de raie homogène). Nous donnons dans l'article [XII] des références relatives à chacune des méthodes figurant dans ce tableau.

	METHODES	CARACTERISTIQUES
Spectroscopie optique par rayonnement monochromatique accordable Mesure de différences de fréquences optiques (interférométrie, battements lumineux)	<p>Jets atomiques</p> <p>Détection optique</p> <p>Détection non-optique</p> <p>Fluorescence</p> <p>Absorption</p> <p>Déviations magnétique</p> <p>Photo-déviations</p> <p>Photo-ionisation</p> <p>Ionisation par champ E (niveaux de Rydberg)</p>	<p>Sélection géométrique des vitesses transversales</p> <p>Pas d'effets de puissance (interaction linéaire)</p> <p>Pas d'élargissement des raies par collisions</p>
Spectroscopie optique cohérente (par rayonnement à bande large et à fréquence fixe) Mesure de fréquences hertziennes	<p>Spectroscopie non-linéaire</p> <p>Absorption saturée</p> <p>Affinement des raies d'absorption (ALN)</p> <p>Affinement des raies de fluorescence (FLN)</p> <p>Spectroscopie multiphotonique</p> <p>Battements quantiques</p> <p>Résolution temporelle (rayonnement pulsé)</p> <p>Résolution spatiale (jets-ioniques ou neutres-rapides)</p> <p>Résonances en lumière modulée</p> <p>Double-résonance</p> <p>Croisements de niveaux</p>	<p>Sélection radiative d'une classe de vitesses</p> <p>Résonances parasites de croisements</p> <p>Utilisation de toutes les vitesses</p> <p>Nécessité d'intensités lumineuses élevées ou de niveaux relais</p> <p>Utilisation de toutes les vitesses</p> <p>Mesures simples et précises</p> <p>Méthodes en général bien adaptées à l'étude des niveaux très excités</p>

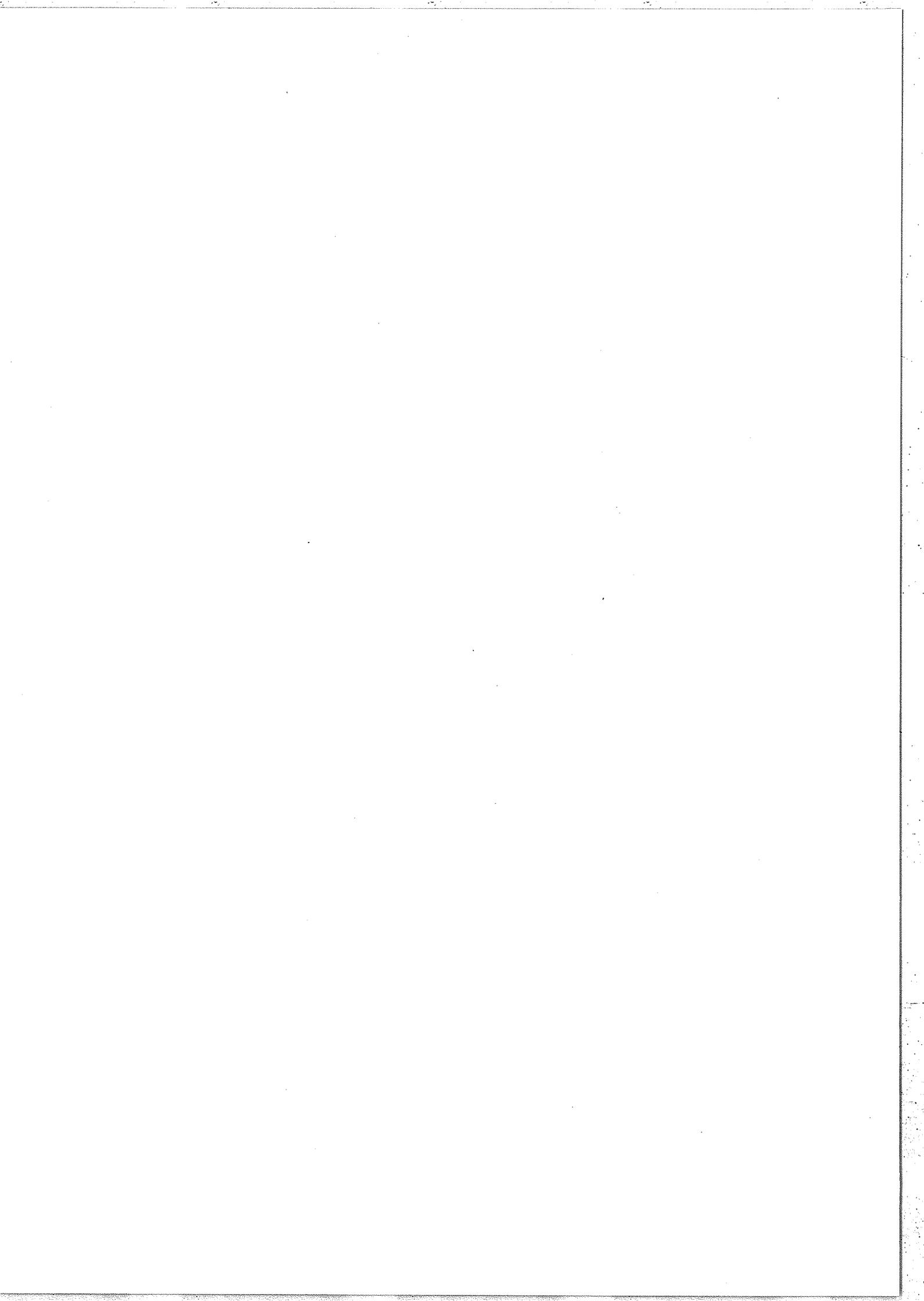


BIBLIOGRAPHIE DU CHAPITRE II

- [1] R. Minkowski et H. Bruck, Z. Phys. 95, 274 (1935).
- [2] L. Dunoyer, C. R. Acad. Sc. 152, 592 (1911) ; Le Radium 8, 142 (1911).
- [3] L. Dunoyer, C. R. Acad. Sc. 157, 1068 (1913).
- [4] A. Bogros, C. R. Acad. Sc. 183, 124 (1926).
- [5] A. Bogros et F. Esclangon, C. R. Acad. Sc. 195, 369 (1932) ;
F. Esclangon, Ann. Physique 1, 267 (1934).
- [6] R. Minkowski et H. Bruck, Z. Phys. 195, 284 (1935).
- [7] K. W. Meissner et K. F. Luft, Ann. Physik 28, 667 (1937).
- [8] H. Schüler, Naturwiss. 16, 512 (1928).
- [9] D. A. Jackson et H. Kuhn, Proc. Roy. Soc. A167, 205 (1938).
- [10] F. Schuda, M. Hercher et C. R. Stroud Jr., Appl. Phys. Lett. 22,
360 (1973).
- [11] W. Hartig et H. Walther, Appl. Phys. 1, 171 (1973).
- [12] W. Lange, J. Luther, B. Nottbeck et H. W. Schröder, Opt. Comm. 8,
157 (1973).
- [13] T. W. Hansch, I. S. Shahin et A. L. Schawlow, Phys. Rev. Lett. 27,
707 (1971).
- [14] G. Huber, C. Thibault, R. Klapisch, H. T. Duong, J.-L. Vialle,
J. Pinard, P. Juncar et P. Jacquinet, Phys. Rev. Lett. 34,
1209 (1975).
- [15] N. F. Ramsey, "Molecular Beams", Clarendon Press, Oxford (1956).
- [16] K. F. Smith, "Molecular Beams", Methuen, Londres (1955) ["Jets
Atomiques", Dunod, Paris (1958)].
- [17] K. W. Meissner, Rev. Mod. Phys. 14, 68 (1942).

- [18] P. Jacquinet, in "High-Resolution Laser Spectroscopy", édité par K. Shimoda, Topics in Applied Physics, Vol. 13, Springer-Verlag, Berlin (1976).
- [19] H. M. Gibbs et G. C. Churchill, J. Opt. Soc. Amer. 62, 1130 (1972).
- [20] A. Kastler, Appl. Opt. 1, 17 (1962).
- [21] D. A. Jackson, Proc. Roy. Soc. A263, 289 (1961).
- [22] R. Marrus, D. McColm et J. Yellin, Phys. Rev. 147, 55 (1966).
- [23] R. Marrus et J. Yellin, Phys. Rev. 177, 127 (1969).
- [24] R. Marrus et D. McColm, Phys. Rev. Lett. 15, 813 (1965).
- [25] R. Marrus, E. Wang et J. Yellin, Phys. Rev. Lett. 19, 1 (1967).
- [26] E. Arimondo, M. Inguscio, P. Violino, Rev. Mod. Phys. 49, 31 (1977).
- [27] F. Y. Chu et T. Oka, IEEE, J. Quant. Electron. QE-10, 679 (1975).
- [28] J. H. Broadhurst, M. E. Cage, D. L. Clark, G. W. Greenlees, J. A. R. Griffith et G. R. Isaak, J. Phys. B 7, L513 (1974).
- [29] D. J. Ruben, S. G. Kukolich, L. A. Hackel, D. G. Youmans et S. Ezekiel, Chem. Phys. Lett. 22, 326 (1973).
- [30] J. Kowalski, R. Neumann, F. Träger et G. zu Putlitz, Vth International Conference on Atomic Physics, Berkeley (Juillet 1976).
- [31] H. T. Duong, S. Liberman, J. Pinard et J.-L. Vialle, Phys. Rev. Lett. 33, 339 (1974).
- [32] W. Hartig, V. Wilke et H. Walther, Opt. Commun. 14, 244 (1975).
- [33] R. Champeau et J.-C. Keller, J. Physique 36, L161 (1975).
- [34] U. E. Hochuli, P. Haldemann et S. Siahatgar, J. Appl. Phys. 40, 3374 (1969).
- [35] N. Bloembergen, M. D. Levenson et M. M. Salour, Phys. Rev. Lett., 32, 867 (1974).
- [36] F. Biraben, B. Cagnac et G. Grynberg, Phys. Lett. 49A, 71 (1974).
- [37] P. Tsekeris, K. H. Liao et R. Gupta, Phys. Rev. A13, 2309 (1976).
- [38] F. Bloch et A. Siegert, Phys. Rev. 57, 522 (1940).
- [39] F. Y. Wu, R. E. Grove et S. Ezekiel, Phys. Rev. Lett. 35, 1426 (1975).
- [40] F. Schuda, C. R. Stroud Jr. et M. Hercher, J. Phys. B 7, L198 (1974).
- [41] W. Hartig, W. Rasmussen, R. Schieder et H. Walther, Z. Phys. A278, 205 (1976).

- [42] R. E. Grove, F. Y. Wu et S. Ezekiel, Phys. Rev. A15, 227 (1977).
- [43] O. Stern, Z. Phys. 7, 249 (1921) ; W. Gerlach et O. Stern, Ann. Physik 74, 673 (1924).
- [44] V. W. Cohen, Phys. Rev. 46, 713 (1934).
- [45] I. I. Rabi, J. R. Zacharias, S. Millman et P. Kusch, Phys. Rev. 53, 318 (1938).
- [46] J. R. Zacharias, Phys. Rev. 61, 270 (1942).
- [47] A. Kastler, J. Physique 11, 255 (1950).
- [48] M. Arditi et P. Cerez, I.E.E.E. Trans. Inst. Meas. IM-21, 391 (1972).
- [49] S. D. Rosner, R. A. Holt et T. D. Gaily, Phys. Rev. Lett. 35, 785 (1975).
- [50] W. Ertmer et B. Hofer, Z. Phys. A276, 9 (1976).
- [51] I. I. Rabi, Phys. Rev. 87, 379 (1952).
- [52] H. Bucka, Z. Phys. 191, 199 (1966).
- [53] D. Zimmermann, Z. Phys. 224, 403 (1969).
- [54] H. T. Duong et J.-L. Vialle, Opt. Commun. 12, 71 (1974).
- [55] J. Brossel et A. Kastler, C. R. Acad. Sc. 229, 1213 (1949) ;
J. Brossel et F. Bitter, Phys. Rev. 86, 308 (1952).
- [56] M. L. Perl, I. I. Rabi et B. Senitzky, Phys. Rev. 98, 611 (1955).
- [57] B. Senitzky et I. I. Rabi, Phys. Rev. 103, 315 (1956).
- [58] P. Buck, I. I. Rabi et B. Senitzky, Phys. Rev. 104, 553 (1956).
- [59] R. Marrus, E. C. Wang et J. Yellin, Phys. Rev. 177, 122 (1969).
- [60] I. I. Rabi, J. M. B. Kellogg et J. R. Zacharias, Phys. Rev. 46, 157 (1934).
- [61] L. S. Goodman, communication privée (1971) ; W. J. Childs,
L. S. Goodman et D. Von Ehrenstein, Phys. Rev. 132, 2128 (1963).
- [62] B. D. Zak, Thèse, Université de Californie, Berkeley (1971).
- [63] A. Lemonick, F. M. Pipkin et D. R. Hamilton, Rev. Sc. Instr. 26, 1112 (1955).
- [64] I. Lindgren, Nucl. Instr. 3, 1 (1958).
- [65] J. L. Snider, Thèse, Université de Princeton (1961).
- [66] V. W. Cohen, communication privée (1970).
- [67] C. Cohen-Tannoudji, in "Cargèse Lectures in Physics", Vol. 2, édité par M. Lévy, Gordon & Breach, New York (1968).
- [68] A. R. Edmonds, "Angular Momentum in Quantum Mechanics", Princeton University Press, Princeton (1960).



Chapitre III

EFFETS DE CROISEMENTS DE
NIVEAUX EN CHAMP NUL

Photo II (ci-contre) - Vue partielle de l'appareillage prise au cours d'une expérience de croisements de niveaux avec détection de type Rabi. On remarque de gauche à droite : l'aimant A , le faisceau laser d'asservissement, le faisceau laser de pompage (qui rencontre le jet atomique au centre des bobines d'Helmholtz) , l'aimant B , la région de détection.

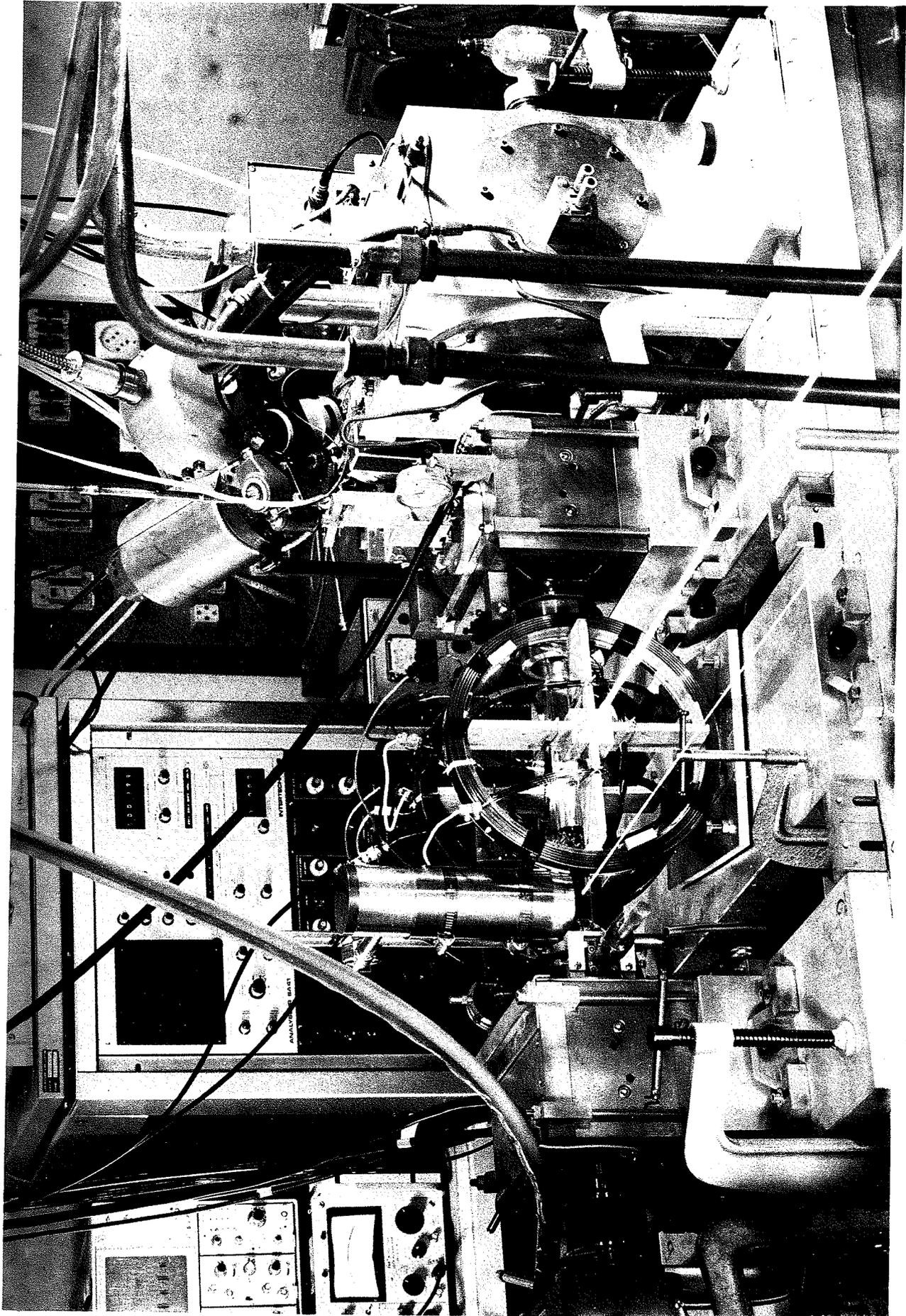
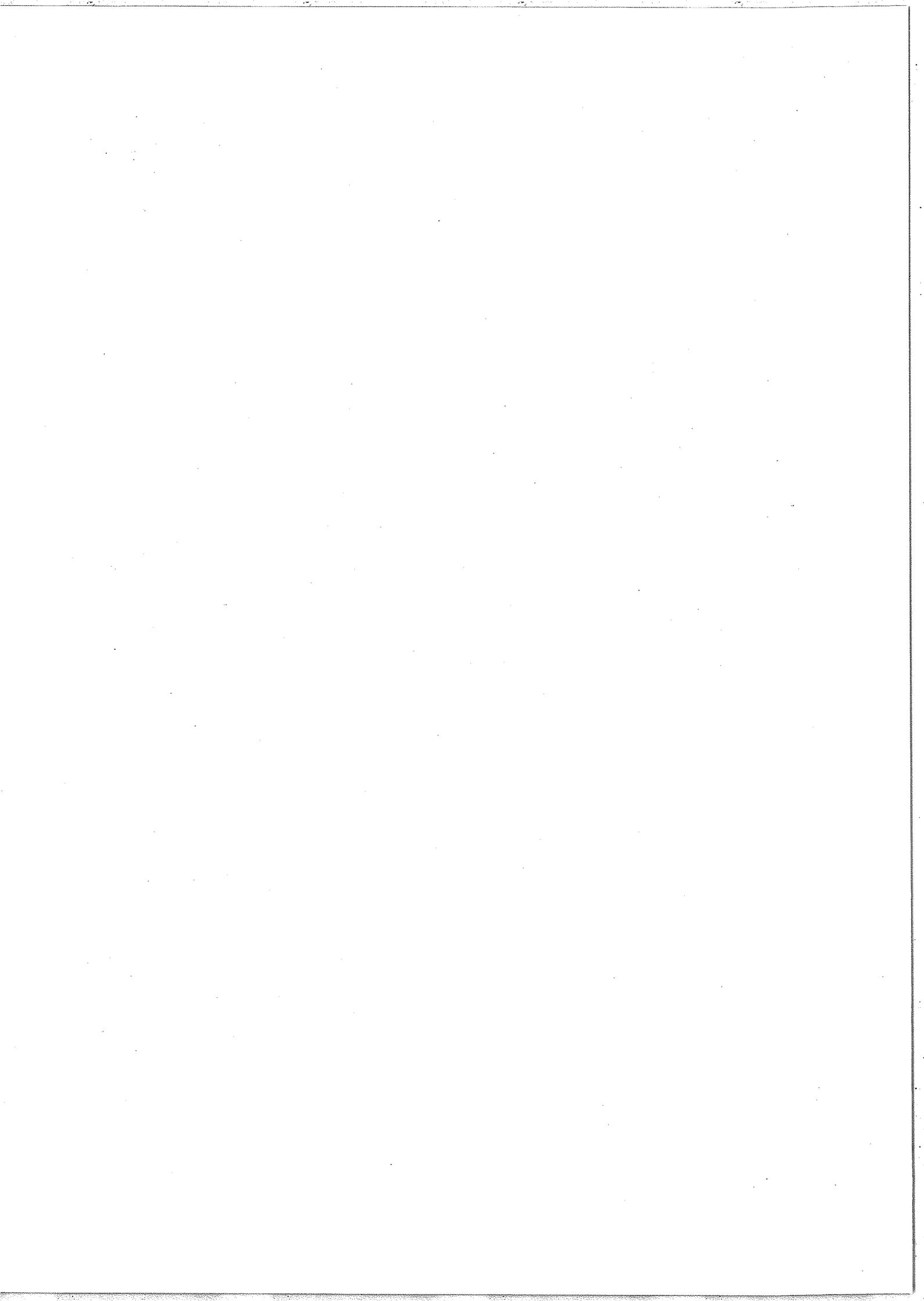


Photo II



INTRODUCTION

Les effets de croisements de niveaux ont été observés dès 1924 grâce à l'effet Hanle de dépolarisation de la lumière de fluorescence par un champ magnétique [1]. Le principe d'une expérience d'effet Hanle est bien connu : un échantillon atomique est placé dans un champ magnétique statique H et éclairé par un faisceau polarisé de lumière de résonance ; lorsqu'on balaye le champ H au voisinage de zéro, la lumière de fluorescence observée dans la direction parallèle à la direction de polarisation du faisceau de pompage présente une variation résonnante (de forme lorentzienne si les directions de polarisation des faisceaux de pompage et de détection sont perpendiculaires). La largeur de cette résonance est la largeur naturelle γ de l'état excité. Les résonances de croisements de niveaux en champ nul ont également été observées sur l'état fondamental [2]. Leur largeur, proportionnelle à l'inverse du temps de relaxation de l'état fondamental, est très inférieure à γ .

L'utilisation de sources laser a permis la mise en évidence d'effets non-linéaires par rapport à l'intensité du rayonnement, comme l'apparition de résonances de saturation [3] ou la création d'un moment hexadécapolaire [4]. Ces effets ont été observés sur la fluorescence issue d'une cellule placée dans la cavité d'un laser hélium-néon multimode ¹⁾. Le laser se comporte alors comme une lampe spectrale très brillante. D'autres effets sont liés à l'existence de fréquences discrètes dans la source et d'une distribution des vitesses des atomes dans

1) La création d'un moment hexadécapolaire a aussi été observée dans une expérience où l'on détectait la lumière diffusée vers l'avant par une vapeur de sodium [5].

la cellule, comme la modulation de la fluorescence aux fréquences de battements entre modes (il s'agit là d'un effet linéaire) [6].

Plus récemment, des expériences utilisant un laser à colorant monomode et un jet atomique ¹⁾ ont été réalisées sur le baryum [8] et le sodium [9]. Elles ont montré que, dans le cas d'une excitation quasi-monochromatique de faible intensité (réponse linéaire), la forme de l'effet Hanle est modifiée et sa largeur devient inférieure à γ . Nous avons nous-mêmes obtenu ce résultat avec plusieurs transitions hyperfines d'un jet atomique de sodium pompé par un laser à colorant monomode. Nous nous sommes de plus intéressés aux phénomènes apparaissant à forte intensité (effets non-linéaires) : élargissement de l'effet Hanle, superposition de résonances très étroites résultant du pompage optique de l'état fondamental ²⁾.

Nous avons par ailleurs démontré la possibilité de l'observation non-optique d'effets de croisements de niveaux : Nous avons obtenu dans une expérience de type Rabi des variations résonnantes du nombre d'atomes détectés en déplaçant autour de zéro le champ magnétique appliqué dans la région d'interaction.

Le formalisme de la matrice densité a été employé dans la plupart des études théoriques sur le pompage optique, comme plus généralement dans de nombreux problèmes d'optique quantique [11-13]. Le traitement théorique a évolué en même temps que les caractéristiques des sources lumineuses [14]. La théorie entièrement quantique du pompage optique

¹⁾ Un laser He-Ne monomode a aussi été utilisé pour pomper des atomes de néon placés dans une cellule externe [7]. Mais il apparaît alors des effets autres que ceux que nous voulons étudier, liés à la création de "trous" dans la distribution des vitesses.

²⁾ Des résonances très étroites ont été observées antérieurement sur la fluorescence d'un jet atomique de sodium, dans des conditions expérimentales plus complexes (en particulier en ce qui concerne la polarisation du faisceau de pompage) [10].

par une source classique a été établie en 1962 par Barrat et Cohen-Tannoudji [15]. Une source classique se caractérise par une émission peu intense et de grande largeur spectrale ($\Delta \gg \gamma$). Ducloy a développé une théorie semi-classique valable pour un rayonnement de bande large mais d'intensité quelconque [16]. Cette théorie permet d'interpréter la plupart des effets observés avec un laser multimode ¹⁾. Dans les deux théories, l'évolution de la matrice densité n'est décrite que par des taux de transition. La seconde se distingue de la première par la présence de termes d'émission stimulée, qui introduisent une anisotropie dans le couplage entre l'état supérieur a et l'état inférieur b de la transition. Si le rayonnement est intense, un grand nombre d'interactions successives entre un atome et le champ électromagnétique peuvent se produire, mais elles ne sont pas corrélées.

Le cas d'un rayonnement quasi-monochromatique ($\Delta \ll \gamma$) est conceptuellement très différent. Le temps de corrélation du champ électromagnétique est suffisamment long pour qu'il puisse se produire une oscillation cohérente à la fréquence de Rabi Ω (au moins lorsque $\Omega \gg \gamma$). Les éléments non-diagonaux de la matrice densité entre les états couplés par le rayonnement ne sont plus négligeables : il se crée un dipôle optique macroscopique. Les équations semi-classiques de la matrice densité prennent alors une forme analogue aux équations de Bloch de la résonance magnétique. La résolution exacte de ces équations dans le cas simple d'une transition $J_b=0 \longleftrightarrow J_a=1$ [18] a permis d'interpréter la largeur de l'effet Hanle voisine de $\gamma/2$ observée expérimentalement avec un laser monomode et un jet de baryum [8].

Pour rendre compte de nos expériences sur un jet de sodium, nous avons dû étendre cette théorie à des transitions plus complexes entre 2 niveaux possédant une structure Zeeman. Nous avons choisi comme exemple principal la transition $J_b=2 \longleftrightarrow J_a=1$, qui constitue le

1) Les effets provenant des modes individuels ne peuvent être interprétés qu'à l'aide d'une théorie perturbative [17].

système le plus simple qui soit susceptible de donner lieu à des effets variés (en particulier la création d'un moment hexadécapolaire). Nous effectuons une analyse qualitative à l'aide de la théorie des perturbations et nous donnons les résultats d'une résolution numérique exacte. A faible intensité lumineuse (réponse linéaire), la monochromaticité du rayonnement entraîne que les cohérences optiques dépendent de H suivant une lorentzienne dont la largeur est une fraction de γ qui peut être inférieure à 1 (effet Zeeman "anormal"). En conséquence, les populations présentent une variation résonnante (somme de lorentziennes) dont la largeur peut être inférieure à γ et les alignements transversaux une variation résonnante (qui provient à la fois de leur évolution propre et de celle des cohérences optiques) dont la largeur peut être inférieure à $\gamma/2$. A plus forte intensité lumineuse (effets non-linéaires), il se superpose à ces variations des résonances très étroites résultant du couplage avec les cohérences Zeeman (alignement, moment hexadécapolaire) de l'état fondamental. Dans le cas particulier de la composante hyperfine $F_b=2 \longleftrightarrow F_a=1$ de la raie D_1 du sodium, l'émission spontanée peut se produire vers le second niveau hyperfin de l'état fondamental ; dans une expérience de jet atomique, la durée de l'interaction avec le rayonnement est limitée au temps de transit des atomes à travers le faisceau laser. Nous montrons les modifications introduites par ces conditions expérimentales.

Il existe de nombreux articles de revue sur le pompage optique classique [19 - 21] ainsi que quelques articles récents sur le pompage laser [14, 22].

A - ETUDE THEORIQUE.

1 - POSITION DU PROBLEME.

Nous considérons un jet d'atomes se déplaçant dans la direction Oy (Fig. 1). Le jet atomique est illuminé à angle droit par un rayonnement laser de fréquence ω , se propageant suivant Oz et polarisé linéairement suivant Ox . Un champ magnétique statique H est appliqué suivant Oz .

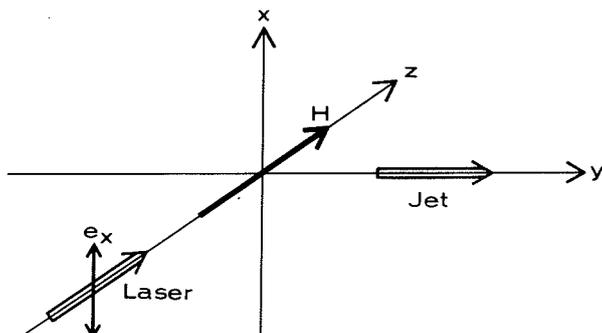


Fig. 1 - Conditions du pompage optique.

Nous utiliserons ici un formalisme semi-classique, comportant un traitement classique du champ électromagnétique et un traitement quantique du système atomique. Le rayonnement laser est représenté par l'onde électromagnétique

$$\vec{E} = \vec{e}_x E_0 \cos \omega t \quad (1)$$

(en l'absence d'effet Doppler, il est inutile d'inclure dans (1) le terme de propagation). Le système atomique (Fig. 2) se compose d'un état fondamental b de moment angulaire J_b (dont les sous-niveaux Zeeman sont notés μ) et d'un état excité a de moment angulaire J_a (sous-niveaux Zeeman m) et de largeur naturelle γ . Ce système est supposé "fermé" vis-à-vis de l'émission spontanée. Nous poserons dans la suite $\hbar=1$. Nous appelons ω_0 la fréquence de la transition $a \longleftrightarrow b$ en champ magnétique nul, $\omega_a = g_a \mu_B H$ et $\omega_b = g_b \mu_B H$ les fréquences de Larmor respectives de l'état excité (facteur de Landé g_a) et de l'état fondamental (facteur de Landé g_b). Les énergies des sous-niveaux Zeeman sont donc $\omega_m = \omega_0 + m \omega_a$ et $\omega_\mu = \mu \omega_b$, les fréquences de Bohr des transitions Zeeman $\omega_{\mu m} = \omega_m - \omega_\mu$.

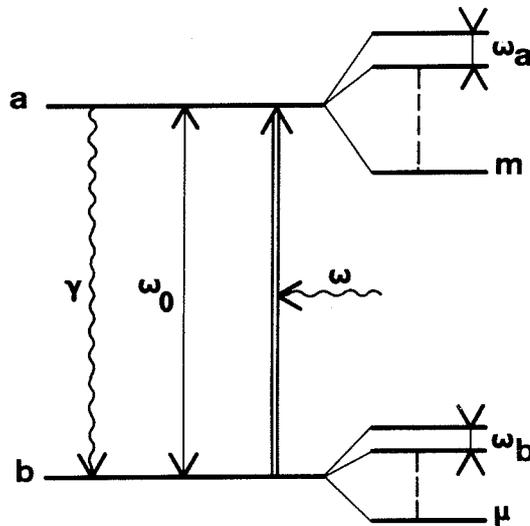


Fig. 2 - Système atomique et notations.

2 - LES "EQUATIONS DE BLOCH OPTIQUES".

L'état de l'ensemble des atomes dans la région d'interaction avec le rayonnement est décrit par une matrice densité $\sigma(t)$, dont l'évolution est régie par l'équation :

$$\frac{d\sigma}{dt} = -i [H, \sigma] + \left(\frac{d\sigma}{dt}\right)_{\text{rel}} \quad (2)$$

H représente l'hamiltonien total

$$H = H_0 + V \quad , \quad (3)$$

où H_0 est la somme de l'hamiltonien de l'atome libre et de l'hamiltonien Zeeman, et V est l'hamiltonien du couplage avec le rayonnement. Le terme $\left(\frac{d\sigma}{dt}\right)_{\text{rel}}$ rend compte des phénomènes de relaxation.

Dans l'approximation dipolaire électrique, l'hamiltonien de l'interaction électromagnétique s'écrit :

$$V = -\vec{D} \cdot \vec{E} \quad , \quad (4)$$

où \vec{D} est l'opérateur-dipôle électrique de l'atome. En supposant le rayonnement quasi-résonnant ($\omega \sim \omega_0$), nous nous plaçons dans "l'approximation du champ tournant":

$$V = -D_x \frac{E_0}{2} e^{-i\omega t} \quad . \quad (5)$$

L'émission spontanée ne peut être traitée rigoureusement dans une approche semi-classique. Les amortissements de l'état excité et du dipôle optique sont décrits par des constantes phénoménologiques γ et $\gamma/2$. L'effet de l'émission spontanée sur l'état fondamental est décrit par un terme de transfert assurant la conservation du nombre d'atomes.

Nous allons introduire un autre terme de relaxation qui nous permettra de tenir compte de la durée finie de l'interaction tout en nous limitant au calcul du régime stationnaire. Pour un atome de vitesse v ,

la probabilité par unité de temps de quitter la région illuminée par un faisceau laser de diamètre l est $P(v) = v/l$. Moyennée sur la distribution des vitesses dans le jet atomique, elle devient $\Gamma = T^{-1}$, où $T = l/\bar{v}$ est le temps de transit moyen. La constante de relaxation Γ s'applique à tous les éléments de la matrice densité. Mais, en pratique, Γ est très grande devant γ et se comporte comme une constante de relaxation propre à l'état fondamental.

La matrice densité σ peut être décomposée en 4 sous-matrices : les matrices σ_a et σ_b représentant l'état excité et l'état fondamental, et les matrices hermitiques conjuguées $\sigma_{ab} = \sigma_{ba}^\dagger$. Leur taux de variation respectif est donné par :

$$\dot{\sigma}_a = -i[H_0, \sigma_a] - \Gamma \sigma_a - \gamma \sigma_a + i \frac{E_0}{2} [(D_x)_{ab} \sigma_{ba} e^{-i\omega t} - \sigma_{ab} (D_x)_{ba} e^{i\omega t}], \quad (6a)$$

$$\dot{\sigma}_b = -i[H_0, \sigma_b] - \Gamma[\sigma_b - \sigma_b(0)] + \mathcal{C}(\sigma_a) + i \frac{E_0}{2} [(D_x)_{ba} \sigma_{ab} e^{i\omega t} - \sigma_{ba} (D_x)_{ab} e^{-i\omega t}], \quad (6b)$$

$$\dot{\sigma}_{ab} = -i[H_0, \sigma_{ab}] - \Gamma \sigma_{ab} - \frac{\gamma}{2} \sigma_{ab} + i \frac{E_0}{2} [(D_x)_{ab} \sigma_{bb} - \sigma_{aa} (D_x)_{ab}] e^{-i\omega t}, \quad (6c)$$

$$\dot{\sigma}_{ba} = \dot{\sigma}_{ab}^\dagger. \quad (6d)$$

La forme de la matrice de transfert $\mathcal{C}(\sigma_a)$ reflète la symétrie sphérique de l'émission spontanée. Aux termes de relaxation près, les équations (6) ont la même forme que les équations de Bloch décrivant la résonance magnétique d'un spin 1/2. Dans ce dernier cas, comme dans le cas d'un système optique à 2 niveaux simples a et b (équ. II-2), les matrices σ_a , σ_b et σ_{ab} se réduisent à un élément unique.

Lorsqu'on passe dans le référentiel du champ tournant en posant $\sigma_{ab} = \rho_{ab} e^{-i\omega t}$, le système (6) se transforme en un système différentiel à coefficients constants :

$$\dot{\sigma}_a = -i[H_0, \sigma_a] - \Gamma \sigma_a - \gamma \sigma_a + i \frac{E_0}{2} [(D_x)_{ab} \rho_{ba} - \rho_{ab} (D_x)_{ba}] , \quad (7a)$$

$$\dot{\sigma}_b = -i[H_0, \sigma_b] - \Gamma[\sigma_b - \sigma_b(0)] + \mathcal{C}(\sigma_a) + i \frac{E_0}{2} [(D_x)_{ba} \rho_{ab} - \rho_{ba} (D_x)_{ab}] , \quad (7b)$$

$$\dot{\rho}_{ab} = -i[H_0, \rho_{ab}] - \Gamma \rho_{ab} - \frac{\gamma}{2} \rho_{ab} + i \frac{E_0}{2} [(D_x)_{ab} \sigma_{bb} - \sigma_{aa} (D_x)_{ab}] , \quad (7c)$$

$$\dot{\rho}_{ba} = \dot{\rho}_{ab}^\dagger . \quad (7d)$$

3 - EVOLUTION DES ELEMENTS DE LA MATRICE DENSITE.

3-1 RAPPELS.

Nous nous plaçons dans la base des états propres de H_0 ¹⁾. La matrice densité y possède au total $4(J_a + J_b + 1)^2$ éléments. Les éléments

¹⁾ On peut développer l'opérateur densité sur la base des opérateurs tensoriels irréductibles T_q^k [23,24] plutôt que sur la base $|Jm\rangle\langle J'm'|$ que nous utilisons [15]. En polarisation linéaire σ , les seules composantes σ_q^k non nulles à l'intérieur d'un niveau sont telles que k et q soient pairs. Elles représentent respectivement la population totale du niveau ($k=0$), l'alignement ou moment quadrupolaire électrique ($k=2$), le moment hexadécapolaire électrique ($k=4$). Les composantes longitudinales ($q=0$) sont proportionnelles aux populations des sous-niveaux Zeeman, les composantes transversales ($q \neq 0$) sont des superpositions linéaires des cohérences Zeeman $\Delta m=q$ évoluant à la même fréquence. Le formalisme tensoriel est avantageux lorsqu'on doit traiter l'effet de collisions : en les supposant isotropes, on peut associer une constante de relaxation à chaque ordre tensoriel k . Mais il a pour inconvénient que les composantes ρ_{ab}^k entre les états a et b (cohérences optiques) de k différent q n'évoluent pas indépendamment, l'hamiltonien Zeeman n'étant pas isotrope.

diagonaux des matrices σ_a et σ_b , notés respectivement σ_{mm}^a et $\sigma_{\mu\mu}^b$, représentent les "populations" des sous-niveaux Zeeman des états excité et fondamental ; les éléments non diagonaux, notés respectivement $\sigma_{mm'}^a$ et $\sigma_{\mu\mu'}^b$, sont les "cohérences hertziennes" ou "cohérences Zeeman" induites par le rayonnement dans le niveau a et le niveau b. Les matrices σ_{ab} et σ_{ba} ne possèdent que des éléments non diagonaux, notés respectivement $\sigma_{m\mu}^{ab}$ et $\sigma_{\mu m}^{ba}$ et appelés "cohérences optiques".

Alors que les cohérences Zeeman oscillent à des multiples de la fréquence de Larmor ω_a ou ω_b , les cohérences optiques oscillent à des fréquences voisines de la fréquence ω_0 de la transition optique. Les cohérences optiques interviennent dans l'expression de la polarisation électrique macroscopique du milieu atomique. Mais dans une expérience de pompage optique, les signaux de détection s'expriment en fonction des grandeurs internes à l'état excité et à l'état fondamental. Le signal d'effet Hanle, obtenu par détection cohérente de la fluorescence (en polarisation linéaire σ), dépend linéairement des populations et de l'alignement transversal (cohérences $\Delta m=2$) de l'état excité. Il est possible expérimentalement d'isoler la partie du signal correspondant à l'alignement. Le signal obtenu par une détection non cohérente de la fluorescence (polarisation π) ne dépend que des populations σ_{mm}^a . D'autres techniques expérimentales : absorption cohérente [25], diffusion vers l'avant [26], sont sensibles aux cohérences induites dans l'état fondamental.

3-2 EQUATIONS DEVELOPPEES.

La composante cartésienne D_x s'écrit en fonction des composantes standard de l'opérateur vectoriel $D^{(1)}$:

$$D_x = -\frac{1}{\sqrt{2}} (D_1^{(1)} - D_{-1}^{(1)}) \quad (8)$$

En projetant les équations (7), nous verrons apparaître des éléments de matrice du type :

$$\langle J_a m | D_q^{(1)} | J_b \mu \rangle = (-1)^{J_a - m} C_{m\mu}^{ab} \langle J_a || D^{(1)} || J_b \rangle \quad (9)$$

$$\text{et } \langle J_b \mu' | D_{q'}^{(1)} | J_a m' \rangle = (-1)^{J_b - \mu'} C_{\mu'm'}^{ba} \langle J_b || D^{(1)} || J_a \rangle, \quad (10)$$

où nous avons introduit pour notation abrégée des symboles $3j$:

$$C_{m\mu}^{ab} = \begin{pmatrix} J_a & 1 & J_b \\ -m & q & \mu \end{pmatrix} \quad (11)$$

$$\text{et } C_{\mu'm'}^{ba} = \begin{pmatrix} J_b & 1 & J_a \\ -\mu' & q' & m' \end{pmatrix} \quad (12)$$

Nous définirons la fréquence de Rabi associée à la transition $a \longleftrightarrow b$ à l'aide de la formule introduite pour un système à 2 niveaux simples (équ. II-3) :

$$\Omega = d E_0, \quad (13)$$

d prenant ici une forme généralisée définie par :

$$d^2 = \sum_{m\mu} d_{m\mu}^2 = \sum_{m\mu} |\langle J_a m | D_q^{(1)} | J_b \mu \rangle|^2 = \frac{1}{3} |\langle J_a || D^{(1)} || J_b \rangle|^2. \quad (14)$$

On peut toujours poser, puisque $D^{(1)}$ est hermitique :

$$d = \frac{1}{\sqrt{3}} \langle J_a || D^{(1)} || J_b \rangle = (-1)^{J_a - J_b} \frac{1}{\sqrt{3}} \langle J_b || D^{(1)} || J_a \rangle. \quad (15)$$

Pour simplifier l'écriture des équations, nous utiliserons le paramètre :

$$\tilde{\Omega} = \frac{\sqrt{3}}{2\sqrt{2}} \Omega. \quad (16)$$

La théorie de l'émission spontanée montre que, dans la base que nous avons choisie, la matrice de transfert $\mathcal{C}(\sigma_a)$ a pour éléments de matrice [15, 27] :

$$\langle J_b \mu | \sigma_a | J_b \mu' \rangle = \gamma (2J_a + 1) (-1)^{2J_b - \mu - \mu'} \sum_m C_{m=\mu+q, \mu}^{a b} C_{m'=\mu'+q, \mu'}^{a b} \sigma_{m=\mu+q, m'=\mu'+q}^a \quad (17)$$

Nous supposons qu'en régime permanent N atomes sont présents dans la région d'interaction. En l'absence de rayonnement, ces N atomes seraient répartis de façon égale entre les niveaux Zeeman de l'état fondamental :

$$\langle J_b \mu | \sigma_b(0) | J_b \mu' \rangle = \delta_{\mu\mu'} \frac{N}{2J_b + 1} \quad (18)$$

Finalement, on obtient à partir de (7) le système d'équations suivant :

$$\dot{\sigma}_{mm'}^a = i \omega_{mm'} \sigma_{mm'}^a - \Gamma \sigma_{mm'}^a - \gamma \sigma_{mm'}^a \quad (19a)$$

$$- i \tilde{\Omega} \left\{ \begin{array}{l} (-1)^{J_a - m} (C_{m, \mu=m-1}^{a b} \rho_{\mu=m-1, m'}^{b a} - C_{m, \mu=m+1}^{a b} \rho_{\mu=m+1, m'}^{b a}) \\ + (-1)^{J_a - m'} (-\rho_{m, \mu=m'-1}^{a b} C_{\mu=m'-1, m'}^{b a} + \rho_{m, \mu=m'+1}^{a b} C_{\mu=m'+1, m'}^{b a}) \end{array} \right\}$$

$$\dot{\sigma}_{\mu\mu'}^b = i \omega_{\mu\mu'} \sigma_{\mu\mu'}^b - \Gamma (\sigma_{\mu\mu'}^b - \frac{N}{2J_b + 1} \delta_{\mu\mu'}) \quad (19b)$$

$$+ \gamma (2J_a + 1) (-1)^{2J_b - \mu - \mu'} \sum_m C_{m=\mu+q, \mu}^{a b} C_{m'=\mu'+q, \mu'}^{a b} \sigma_{m=\mu+q, m'=\mu'+q}^a$$

$q=-1, 0, 1$

$$- i \tilde{\Omega} \left\{ \begin{array}{l} (-1)^{J_a - \mu} (C_{\mu, m=\mu-1}^{b a} \rho_{m=\mu-1, \mu'}^{a b} - C_{\mu, m=\mu+1}^{b a} \rho_{m=\mu+1, \mu'}^{a b}) \\ + (-1)^{J_a - \mu'} (-\rho_{\mu, m=\mu'-1}^{b a} C_{m=\mu'-1, \mu'}^{a b} + \rho_{\mu, m=\mu'+1}^{b a} C_{m=\mu'+1, \mu'}^{a b}) \end{array} \right\}$$

$$\dot{\rho}_{m\mu}^{ab} = i(\omega_{m\mu} + \omega) \rho_{m\mu}^a - \Gamma \rho_{m\mu}^{ab} - \frac{\gamma}{2} \rho_{m\mu}^{ab} \quad (19c)$$

$$- i \tilde{\Omega} \left\{ \begin{array}{l} (-1)^{J_a - m} (C_{m, \mu'=m-1}^{a b} \sigma_{\mu'=m-1, \mu}^b - C_{m, \mu'=m+1}^{a b} \sigma_{\mu'=m+1, \mu}^b) \\ + (-1)^{J_a - \mu} (-\sigma_{m, m'=\mu-1}^a C_{m'=\mu-1, \mu}^{a b} + \sigma_{m, m'=\mu+1}^a C_{m'=\mu+1, \mu}^{a b}) \end{array} \right\}$$

Nous rappelons que $\sigma_{m\mu}^{ab} = \rho_{m\mu}^{ab} e^{-i\omega t}$. On dispose par ailleurs des relations liées à l'hermiticité de la matrice densité : $\rho_{\mu m}^{ba} = \rho_{m\mu}^{ab*}$, $\sigma_{m'm}^a = \sigma_{mm'}^{a*}$, $\sigma_{\mu'\mu}^b = \sigma_{\mu\mu'}^{b*}$.

Dans chacune des parenthèses relatives au couplage atomes-rayonnement, le premier terme provient de la composante σ_+ et le second terme de la composante σ_- du champ électromagnétique. La structure des équations (19) entraîne que seules les cohérences Zeeman telles que Δm pair ou $\Delta\mu$ pair et les cohérences optiques telles que $|m-\mu|$ impair soient non nulles. Cela provient de ce que nous traitons le cas d'une polarisation linéaire perpendiculaire au champ magnétique. Le pompage en polarisation linéaire impose des relations de symétrie supplémentaires lorsque le laser est à résonance exacte ($\omega = \omega_0$) : $\sigma_{mm'}^a = \sigma_{-m'-m}^a$, $\sigma_{\mu\mu'}^b = \sigma_{-\mu'-\mu}^b$, $\rho_{\mu m}^{ba} = \rho_{-m-\mu}^{a b}$, $\rho_{m\mu}^{ab} = \rho_{-\mu-m}^{b a}$.

Pour étudier le régime stationnaire, il faut annuler les taux de variation des éléments de la matrice densité dans les équations (19). On obtient alors un système algébrique linéaire dont on peut toujours écrire la solution analytique exacte. Mais, en pratique, celle-ci n'est exploitable que pour les transitions les plus simples, par exemple $J_b = 0 \leftrightarrow J_a = 1$ [18]. Pour les transitions plus complexes, une résolution numérique devient nécessaire.

4 - EXEMPLE DE LA TRANSITION $J_b=2 \leftrightarrow J_a=1$.

4-1 ECRITURE DES EQUATIONS.

En pompage de polarisation linéaire σ , la matrice densité qui décrit le système atomique ($J_a=1, J_b=2$) possède 34 éléments non nuls sur 64 au total (Fig. 3) : 8 populations, 10 cohérences Zeeman et 16 cohérences optiques. Pour simplifier, nous nous limiterons ici au cas $\omega = \omega_0$. Il ne reste plus alors que 21 éléments prenant des valeurs distinctes : 5 populations, 8 cohérences Zeeman et 8 cohérences optiques. Les cohérences étant complexes conjuguées deux à deux, nous n'écrirons que 13 équations au lieu de 21 :

$$\dot{\sigma}_{00}^a = -\gamma \sigma_{00}^a - i \tilde{\Omega} \frac{2}{\sqrt{10}} (\rho_{01}^{ab} - \rho_{10}^{ba}) , \quad (20a)$$

$$\dot{\sigma}_{11}^a = -\gamma \sigma_{11}^a - i \tilde{\Omega} \left[\frac{1}{\sqrt{30}} (\rho_{01}^{ba} - \rho_{10}^{ab}) + \frac{1}{\sqrt{5}} (\rho_{12}^{ab} - \rho_{21}^{ba}) \right] , \quad (20b)$$

$$\dot{\sigma}_{-11}^a = -[\gamma - 2i \omega_a] \sigma_{-11}^a - i \tilde{\Omega} \left[\frac{2}{\sqrt{5}} \rho_{-12}^{ab} - \frac{2}{\sqrt{30}} \rho_{01}^{ba} \right] , \quad (20c)$$

$$\dot{\sigma}_{00}^b = -\Gamma(\sigma_{00}^b - n) + 3\gamma \left[\frac{1}{15} \sigma_{11}^a + \frac{2}{15} \sigma_{00}^a \right] - i \tilde{\Omega} \frac{2}{\sqrt{30}} (\rho_{10}^{ab} - \rho_{01}^{ba}) , \quad (20d)$$

$$\dot{\sigma}_{11}^b = -\Gamma(\sigma_{11}^b - n) + 3\gamma \left[\frac{1}{10} \sigma_{11}^a + \frac{1}{10} \sigma_{00}^a \right] - i \tilde{\Omega} \frac{1}{\sqrt{10}} (\rho_{10}^{ba} - \rho_{01}^{ab}) , \quad (20e)$$

$$\dot{\sigma}_{22}^b = -\Gamma(\sigma_{22}^b - n) + 3\gamma \frac{1}{5} \sigma_{11}^a - i \tilde{\Omega} \frac{1}{\sqrt{5}} (\rho_{21}^{ba} - \rho_{12}^{ab}) , \quad (20f)$$

$$\dot{\sigma}_{-11}^b = -[\Gamma - 2i \omega_b] \sigma_{-11}^b + 3\gamma \frac{1}{10} \sigma_{-11}^a - i \tilde{\Omega} \frac{2}{\sqrt{10}} \rho_{01}^{ab} , \quad (20g)$$

$$\dot{\sigma}_{02}^b = -[\Gamma - 2i \omega_b] \sigma_{02}^b + 3\gamma \frac{1}{5\sqrt{6}} \sigma_{-11}^a - i \tilde{\Omega} \left[\frac{1}{\sqrt{5}} \rho_{01}^{ba} + \frac{1}{\sqrt{30}} \rho_{12}^{ab} - \frac{1}{\sqrt{30}} \rho_{-12}^{ab} \right] , \quad (20h)$$

$$\dot{\sigma}_{-22}^b = -[\Gamma - 4i \omega_b] \sigma_{-22}^b - i \tilde{\Omega} \frac{2}{\sqrt{5}} \rho_{-12}^{ab} , \quad (20i)$$

$$\dot{\rho}_{01}^{ab} = -\left[\frac{\gamma}{2} - i \omega_b \right] \rho_{01}^{ab} - i \tilde{\Omega} \left[\frac{1}{\sqrt{10}} \sigma_{00}^a - \frac{1}{\sqrt{10}} \sigma_{11}^b + \frac{1}{\sqrt{10}} \sigma_{-11}^b \right] , \quad (20j)$$

$$\dot{\rho}_{10}^{ab} = -\left[\frac{\gamma}{2} + i \omega_a \right] \rho_{10}^{ab} - i \tilde{\Omega} \left[\frac{1}{\sqrt{30}} \sigma_{00}^b - \frac{1}{\sqrt{30}} \sigma_{11}^a + \frac{1}{\sqrt{30}} \sigma_{1-1}^a - \frac{1}{\sqrt{5}} \sigma_{20}^b \right] , \quad (20k)$$

$$\dot{\rho}_{12}^{ab} = -\left[\frac{\gamma}{2} - i(2\omega_b - \omega_a) \right] \rho_{12}^{ab} - i \tilde{\Omega} \left[\frac{1}{\sqrt{5}} \sigma_{11}^a - \frac{1}{\sqrt{5}} \sigma_{22}^b + \frac{1}{\sqrt{30}} \sigma_{02}^b \right] , \quad (20l)$$

$$\dot{\rho}_{-12}^{ab} = -\left[\frac{\gamma}{2} - i(2\omega_b + \omega_a) \right] \rho_{-12}^{ab} - i \tilde{\Omega} \left[\frac{1}{\sqrt{5}} \sigma_{-11}^a - \frac{1}{\sqrt{30}} \sigma_{02}^b + \frac{1}{\sqrt{5}} \sigma_{-22}^b \right] . \quad (20m)$$

La signification des notations est évidente ; par exemple :

$\rho_{-12}^{ab} = \rho_{m=-1, \mu=2}^{a b}$. Nous avons négligé Γ devant γ et posé $n = N/5$.

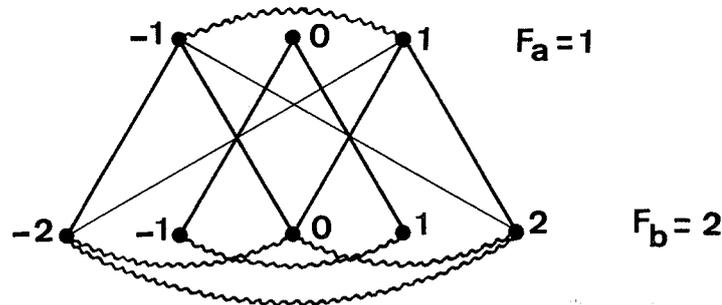


Fig. 3 - Représentation symbolique des éléments non nuls de la matrice densité décrivant un système atomique ($J_b=2, J_a=1$) pompé par un rayonnement de polarisation linéaire σ . Points : populations ; traits ondulés : cohérences Zeeman ; traits droits : cohérences optiques (les traits plus fins sont des composantes d'un moment optique octupolaire).

En régime stationnaire, le système (20) devient un système algébrique linéaire de 21 équations à 21 inconnues, dont certaines possèdent un second membre (20d,e,f). Ce système a été résolu numériquement ¹⁾ pour diverses valeurs du champ magnétique H et de la puissance par unité de surface P du rayonnement laser. Nous utilisons en fait les variables sans dimension ω_a/γ (proportionnelle à H) et $\tilde{\Omega}/\gamma$ (proportionnelle à E_0 , donc à $P^{1/2}$). Les valeurs choisies pour les paramètres atomiques sont celles de la composante hyperfine $F_b=2 \leftrightarrow F_a=1$ de la raie D_1 du sodium : $g_a = -\frac{1}{6}$, $g_b = \frac{1}{2}$, $\gamma = 10$ MHz. Dans cet exemple, $\omega_a/\gamma = 1$ correspond à $H \approx 43$ G et $\tilde{\Omega}/\gamma = 1$ à $P \approx 1$ mW/cm². Nous avons pris la valeur $\Gamma = 0,1$ MHz telle que $T/\tau = 100$ et fixé $N=1$ ($n=0,2$).

Nous avons tracé les courbes de variation de divers éléments de la matrice densité en fonction de ω_a/γ , pour des valeurs croissantes de $\tilde{\Omega}/\gamma$. Compte-tenu de la symétrie vis-à-vis de l'inversion du champ

1) Les calculs numériques que nous mentionnons dans l'ensemble de ce chapitre ont été effectués par M.-G. Schweighofer sur l'ordinateur UNIVAC 1110.

magnétique, nous ne reproduirons qu'une moitié de chacune de ces courbes. Pour expliquer leur forme, nous allons d'abord nous placer dans le cadre de la théorie des perturbations. Mais, même dans le paragraphe qui suit, les courbes présentées sont celles qui ont été obtenues à partir du calcul numérique exact.

4-2 ANALYSE DE L'INTERACTION A FAIBLE INTENSITE DU RAYONNEMENT.

La méthode de résolution des équations de la matrice densité par itération est classique [12,28,17]. Nous cherchons la solution des équations (20) sous forme d'un développement en puissances successives du paramètre $\tilde{\Omega}$ proportionnel à l'amplitude du champ électrique du rayonnement. Les cohérences optiques apparaissent aux ordres impairs du développement et les grandeurs internes aux états a et b aux ordres pairs. L'interaction est ainsi décomposée en une succession de processus à 1 photon que nous représenterons à l'aide de diagrammes. Les probabilités relatives des transitions figurant dans ces diagrammes sont reportés dans la Figure 4.

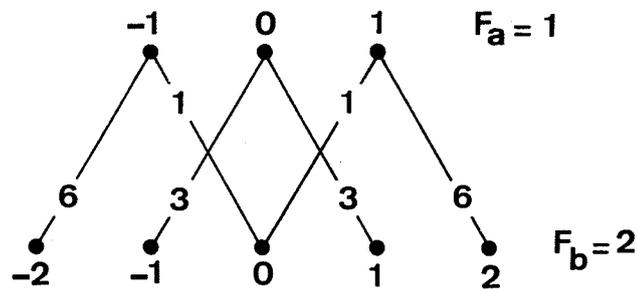


Fig. 4 - Diagramme des transitions Zeeman induites par un rayonnement de polarisation linéaire σ dans un système $(J_b=2, J_a=1)$. Les probabilités relatives de ces transitions sont proportionnelles aux coefficients $3j \begin{pmatrix} a & b \\ m & \mu \end{pmatrix}^2 = \begin{pmatrix} b & a \\ \mu & m \end{pmatrix}^2$.

4-2-1 Réponse linéaire.

A l'ordre 0, seules les populations de l'état fondamental prennent une valeur non nulle :

$$\sigma_{\mu\mu}^b(0) = n \quad . \quad (21)$$

La réponse linéaire décrit la modification de l'état du système atomique résultant d'un processus d'absorption d'un photon. Elle correspond aux termes d'ordre 1 dans le développement des cohérences optiques et d'ordre 2 dans le développement des populations et cohérences Zeeman.

a - Alignement.

Le diagramme de la Figure 5 symbolise la création d'alignement

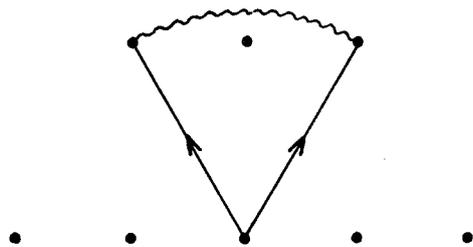


Figure 5

transversal dans l'état excité par excitation cohérente des états $m=1$ et $m=-1$. D'après (20c) :

$$\sigma_{-11}^a(2) = i \tilde{\Omega} \frac{2}{\sqrt{30}} \rho_{01}^{ba(1)} \frac{1}{\gamma - 2i\omega_a}, \quad (22)$$

avec, d'après (20k) :

$$\rho_{01}^{ba(1)} = i \tilde{\Omega} \frac{1}{\sqrt{30}} \sigma_{00}^b(0) \frac{1}{\frac{\gamma}{2} - i\omega_a} \quad . \quad (23)$$

D'où :

$$\sigma_{-11}^a(2) = - \tilde{\Omega}^2 \frac{n}{30} \frac{1}{\left(\frac{\gamma}{2} - i\omega_a\right)^2}, \quad (24)$$

$$\text{Re } \sigma_{-11}^a(2) = - \tilde{\Omega}^2 \frac{n}{30} \frac{\frac{\gamma^2}{4} - \omega_a^2}{\left(\frac{\gamma}{4} + \omega_a^2\right)^2} \quad . \quad (25)$$

Le dénominateur de (25) est le carré du dénominateur d'une fonction de Lorentz de largeur γ . La dépendance en H résulte en effet de 2 facteurs contenus respectivement dans (22) et (23) : l'évolution propre de la cohérence hertzienne à la fréquence $2\omega_a$, interrompue par une relaxation de constante γ , et l'évolution de la cohérence optique à la fréquence ω_a (dans le référentiel du champ tournant), interrompue par une relaxation de constante $\gamma/2$. Lorsque H augmente, ces 2 facteurs tendent à détruire l'alignement, l'un par la précession de Larmor, l'autre par le désaccord Zeeman du laser. Le premier facteur, responsable de l'effet Hanle habituel, existe seul dans le cas du pompage par une source classique. L'alignement varie alors suivant une lorentzienne¹⁾ de largeur γ . L'expression (25) et la Figure 6

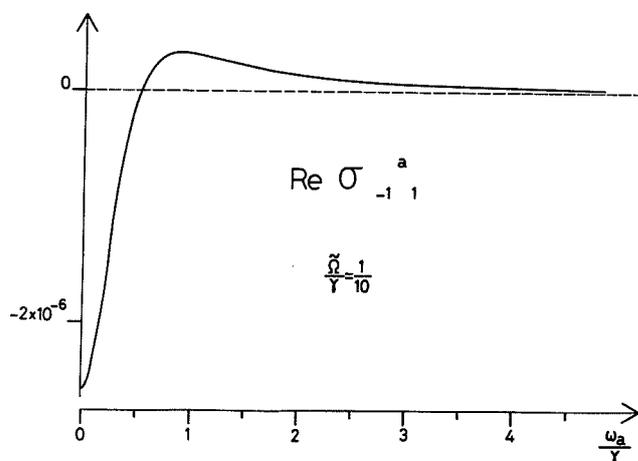


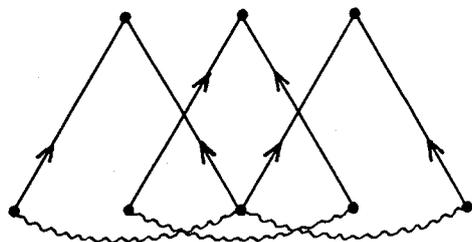
Figure 6

montrent que dans le cas du pompage par un rayonnement monochromatique de faible puissance, l'alignement varie suivant une courbe de forme assez différente, de largeur à mi-hauteur $\Delta\omega_a \approx \gamma/2$ ²⁾ et s'annulant pour $\omega_a = \gamma/2$.

1) Dans le cas du pompage en raie large, la forme lorentzienne est d'ailleurs conservée à toute puissance du rayonnement pour une transition $J_b=0 \leftrightarrow J_a=1$; on observe seulement un accroissement de la largeur par saturation [16].

2) Ce résultat est déjà bien connu, puisqu'il a été établi théoriquement [18] et vérifié expérimentalement [8] pour une transition $J_b=0 \leftrightarrow J_a=1$. Nous montrerons toutefois qu'il n'est vrai que dans le cas d'une transition possédant, ou un niveau fondamental $J_b=0$, ou un niveau excité $J_a=1$ (voir la remarque intitulée "effet Zeeman anormal").

Le diagramme de la Figure 7 représente la création d'alignement



dans l'état fondamental par absorption cohérente à partir de 2 sous-niveaux Zeeman tels que $\Delta\mu = 2$. On trouve par exemple, d'après (20g, j) :

Figure 7

$$\sigma_{-11}^b(2) = \left[-i \tilde{\Omega} \frac{2}{\sqrt{10}} \rho_{01}^{ab(1)} + \gamma \frac{3}{10} \sigma_{-11}^a(2) \right] \frac{1}{\Gamma - 2i\omega_b}, \quad (26)$$

$$\text{où } \rho_{01}^{ab(1)} = i \tilde{\Omega} \frac{1}{\sqrt{10}} \sigma_{11}^b(0) \frac{1}{\frac{\gamma}{2} - i\omega_b}. \quad (27)$$

L'évolution propre de la cohérence hertzienne se produit ici à la fréquence $2\omega_b$ et avec le temps de relaxation Γ (26). Le dénominateur correspondant impose à la courbe de variation de l'alignement de l'état fondamental une largeur $\Delta\omega_b \approx \Gamma$, plus étroite d'un facteur de l'ordre de $\gamma/\Gamma = T/\tau$ que celle de l'alignement de l'état excité. Cela est illustré par la comparaison des Figures 8 et 6, établies pour la même valeur de $\tilde{\Omega}/\gamma$ (noter que l'échelle horizontale de la Figure 8 est

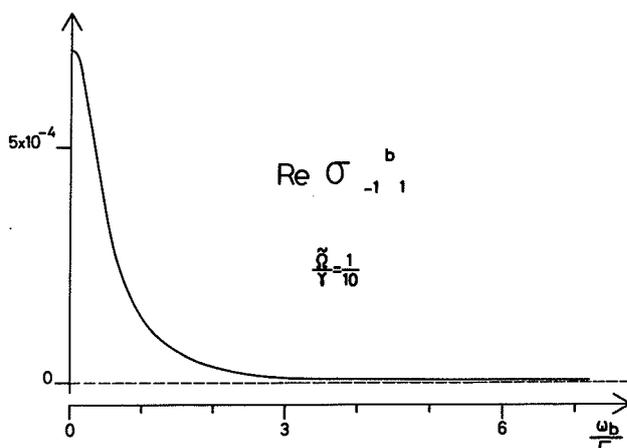


Figure 8

dilatée d'un facteur 200 par rapport à celle de la Figure 6). L'expression (26) indique que $\sigma_{-11}^b(2)$ comporte 2 termes. Le premier terme, décrivant l'interaction avec le rayonnement (Fig. 7), est de signe opposé à $\sigma_{-11}^a(2)$. Il est partiellement compensé par le terme représentant le transfert par émission spontanée de l'alignement de l'état excité (ce second terme est égal au 1/10 du premier en champ magnétique nul).

b - Populations.

A l'ordre 2, la variation des populations avec le champ magnétique vient exclusivement des cohérences optiques et traduit le désaccord progressif du laser par effet Zeeman. Par exemple, d'après (20a) et (27) :

$$\sigma_{00}^a(2) = \tilde{\Omega} \frac{4}{\sqrt{10}} \operatorname{Im} \rho_{01}^{ab(1)} \frac{1}{\gamma} \quad (28)$$

$$= \tilde{\Omega}^2 \frac{n}{5} \frac{1}{\frac{\gamma^2}{4} + \omega_b^2} \quad (29)$$

La population du niveau $m=0$ de l'état excité varie comme une lorentzienne de largeur $\Delta\omega_b = \gamma$ (soit $\Delta\omega_a = \gamma/3$ sur la Figure 9).

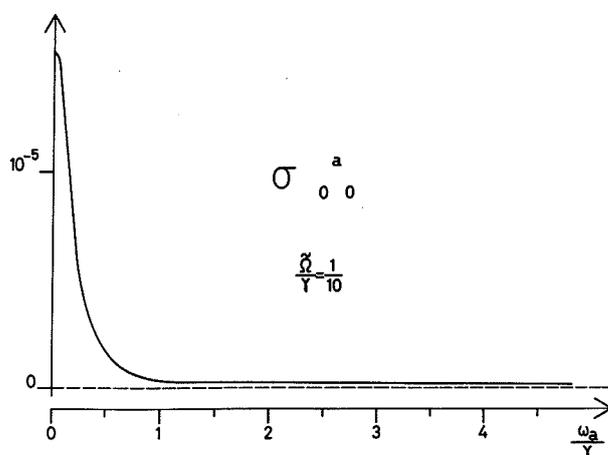


Figure 9

Le niveau $m=0$ est peuplé à partir des niveaux $\mu = \mp 1$ de l'état fondamental mais, par suite de la symétrie $\omega = \omega_0$, l'expression (28) ne

fait intervenir qu'une seule cohérence optique. Le niveau $m=1$ étant peuplé à partir des niveaux $\mu=1$ et $\mu=2$, la population $\sigma_{11}^a(2)$ est issue de 2 termes-source. D'après (20b) :

$$\sigma_{11}^a(2) = \tilde{\Omega} \left[-\frac{2}{\sqrt{30}} \operatorname{Im} \rho_{10}^{ab(1)} + \frac{2}{\sqrt{5}} \operatorname{Im} \rho_{12}^{ab(1)} \right] \frac{1}{\gamma} \quad (30)$$

où, d'après (20k, l) :

$$\rho_{10}^{ab(1)} = -i \tilde{\Omega} \frac{1}{\sqrt{30}} \sigma_{00}^b(0) \frac{1}{\frac{\gamma}{2} + i \omega_a} \quad (31)$$

$$\rho_{12}^{ab(1)} = i \tilde{\Omega} \frac{1}{\sqrt{5}} \sigma_{22}^b(0) \frac{1}{\frac{\gamma}{2} - i(2\omega_b - \omega_a)} \quad (32)$$

On en déduit :

$$\sigma_{11}^a(2) = \tilde{\Omega}^2 \frac{n}{30} \left[\frac{1}{\frac{\gamma^2}{4} + \omega_a^2} + 6 \frac{1}{\frac{\gamma^2}{4} + (2\omega_b - \omega_a)^2} \right] \quad (33)$$

La courbe $\sigma_{11}^a(H)$ est donc la superposition de 2 lorentziennes de largeur et d'intensité différentes. Dans la suite de ce paragraphe, nous exprimerons les largeurs dans l'échelle commune de la fréquence de Larmor de l'état excité : $\omega_a = (g_a/g_b) \omega_b$, en prenant l'exemple numérique de la transition $F_b=2 \leftrightarrow F_a=1$ de la raie D_1 du sodium : $g_a/g_b = -1/3$. Les largeurs des lorentziennes apparaissant dans (33)

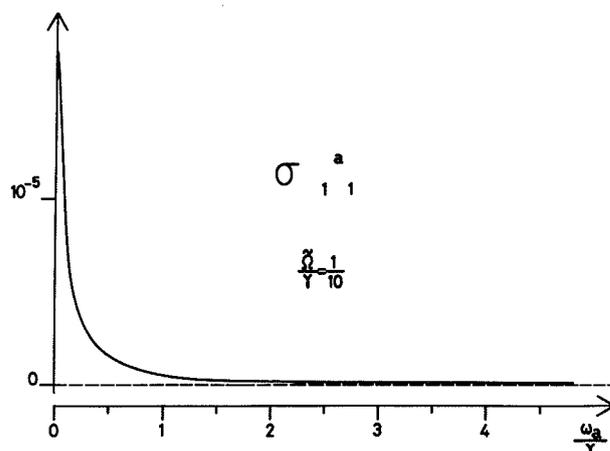


Figure 10

sont alors respectivement γ et $\gamma/7$. La largeur à mi-hauteur de la courbe résultante (Fig. 10) est voisine de $\gamma/6$.

Le calcul des populations de l'état fondamental est légèrement différent à cause du couplage par émission spontanée avec les populations de l'état excité ¹⁾. A faible intensité du rayonnement, les populations du niveau b s'écrivent :

$$\sigma_{\mu\mu}^b = \sigma_{\mu\mu}^{b(0)} + \sigma_{\mu\mu}^{b(2)} = n + \sigma_{\mu\mu}^{b(2)} \quad (34)$$

Le terme d'ordre 2 comporte une partie négative décrivant l'interaction cohérente avec le rayonnement (absorption) et une partie positive décrivant le transfert par émission spontanée. Prenons d'abord l'exemple du niveau $m=2$, couplé par le rayonnement et l'émission spontanée au seul niveau $m=1$. D'après (20f, 32, 33) :

$$\sigma_{22}^{b(2)} = \left[-\tilde{\Omega} \frac{2}{\sqrt{5}} \operatorname{Im} \rho_{12}^{ab(1)} + \gamma \frac{3}{5} \sigma_{11}^{a(2)} \right] \frac{1}{\Gamma} \quad (35)$$

$$= \tilde{\Omega}^2 \frac{\gamma}{\Gamma} \frac{n}{50} \left[-4 \frac{1}{\frac{\gamma^2}{4} + (2\omega_b - \omega_a)^2} + \frac{1}{\frac{\gamma^2}{4} + \omega_a^2} \right] \quad (36)$$

La courbe $\sigma_{22}^b(H)$ (Fig. 11) est la superposition d'une lorentzienne

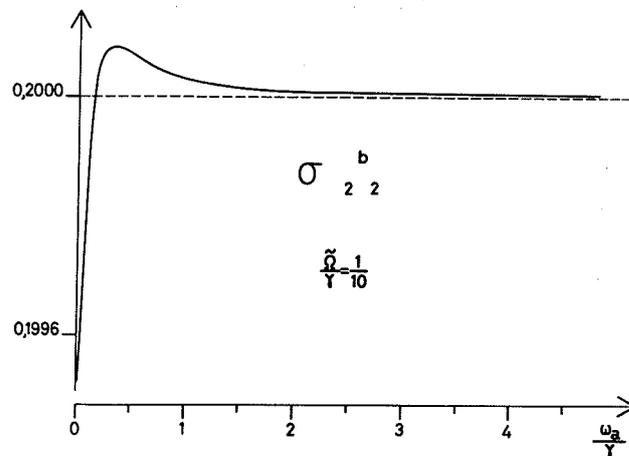


Figure 11

1) L'émission spontanée étant isotrope, ne couple que les populations entre elles et les cohérences Zeeman entre elles.

négative de largeur $\gamma/7$ et d'une lorentzienne positive de largeur γ et d'intensité 4 fois plus faible. La première est la différence entre un terme d'absorption et un terme d'émission spontanée. La seconde vient uniquement de l'émission spontanée. Le niveau $\mu=1$ est couplé par le rayonnement de polarisation σ aux niveaux $m=\mp 1$ et par l'émission spontanée aux niveaux $m=0$ (polarisation π) et $m=\mp 1$ (polarisation σ). D'après (20e, 27, 29, 33) :

$$\sigma_{11}^b(2) = \left[-\tilde{\Omega} \frac{2}{\sqrt{10}} \operatorname{Im} \rho_{01}^{ab(1)} + \gamma \frac{3}{10} (\sigma_{00}^a(2) + \sigma_{11}^a(2)) \right] \frac{1}{\Gamma} \quad (37)$$

$$= \tilde{\Omega}^2 \frac{\gamma}{\Gamma} \frac{n}{100} \left[-4 \frac{1}{\frac{\gamma^2}{4} + \omega_b^2} + 6 \frac{1}{\frac{\gamma^2}{4} + (2\omega_b - \omega_a)^2} + \frac{1}{\frac{\gamma^2}{4} + \omega_a^2} \right] \quad (38)$$

La courbe $\sigma_{11}^b(H)$ est la superposition d'une lorentzienne négative de largeur $\gamma/6$ et de 2 lorentziennes positives de largeur $\gamma/7$ (la plus intense) et γ . La structure de la courbe résultante (Fig. 12) fait apparaître nettement ces 3 composantes. Le cas du niveau $\mu=0$ se

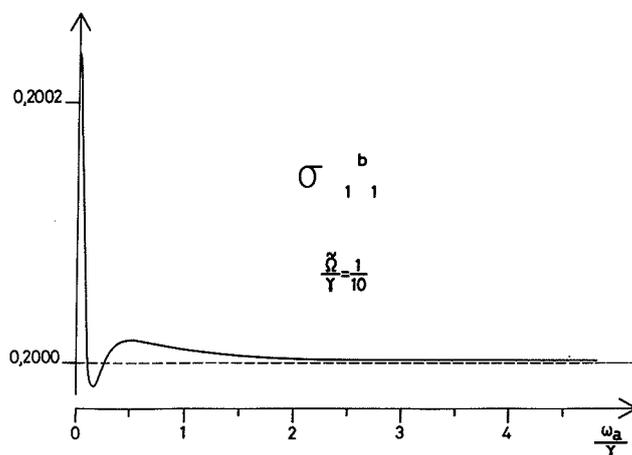


Figure 12

présente de façon analogue. D'après (20d, 23, 29, 33) :

$$\sigma_{00}^b(2) = \left[\tilde{\Omega} \frac{4}{\sqrt{30}} \operatorname{Im} \rho_{10}^{ab(1)} + \gamma \frac{1}{5} (2 \sigma_{00}^a(2) + \sigma_{11}^a(2)) \right] \frac{1}{\Gamma} \quad (39)$$

$$= \tilde{\Omega}^2 \frac{\gamma}{\Gamma} \frac{n}{50} \left[-3 \frac{1}{\frac{\gamma^2}{4} + \omega_a^2} + 4 \frac{1}{\frac{\gamma^2}{4} + \omega_b^2} + 2 \frac{1}{\frac{\gamma^2}{4} + (2\omega_b - \omega_a)^2} \right] \quad (40)$$

On prévoit à nouveau 3 composantes. Mais, ici, les 2 composantes les plus étroites (de largeur $\gamma/6$ et $\gamma/7$) sont de même signe et ne peuvent être distinguées (Fig. 13).

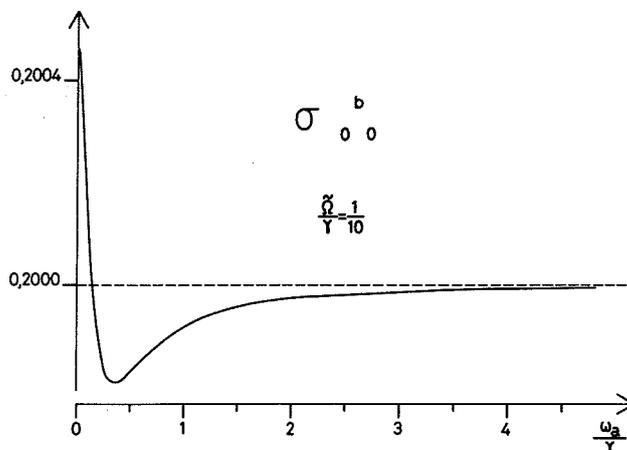


Figure 13

En résumé, dans le cas du pompage par un rayonnement monochromatique de faible puissance, les populations dépendent du champ magnétique comme une somme de fonctions de Lorentz dont la largeur est un multiple rationnel de γ . La forme de la variation est plus compliquée pour les populations de l'état fondamental que pour les populations de l'état excité, car il se superpose aux lorentziennes issues du couplage avec le rayonnement des lorentziennes de signe opposé issues de l'émission spontanée. Rappelons que, dans le cas du pompage par un rayonnement à bande large, les populations ne dépendent pas du champ magnétique à l'ordre 2.

Remarque : L'effet Zeeman "anormal".

L'étude qui précède met en évidence le rôle essentiel joué par les cohérences optiques dans la réponse linéaire. Considérons la cohérence $\rho_{\mu=m-1,m}^{b a}$ ($m \gg 1$) associée à la composante σ_+ du champ électromagnétique. Le dénominateur résonnant de cette cohérence à l'ordre 1 :

$\frac{\gamma}{2} + i [m \omega_a - (m-1) \omega_b]$ exprime la condition de résonance optique pour la transition Zeeman $J_{b,m-1} \longleftrightarrow J_{a,m}$. La largeur qui lui correspond

a pour valeur, rapportée à la fréquence de Larmor de l'état excité : $\Delta\omega_a = \gamma[m - (m-1)g_b/g_a]^{-1}$. Lorsque $J_b=0$ ou $g_b=g_a$ (conditions d'observation du triplet Zeeman "normal" en spectroscopie classique), on trouve $\Delta\omega_a = \gamma$. Lorsque $g_b \neq g_a$ (conditions de l'effet Zeeman "anormal"), il existe un plus grand nombre de fréquences d'évolution des cohérences optiques (ou de fréquences de Bohr des transitions Zeeman). Si $g_b/g_a < 1$ et $m > 1$, elles sont telles que $\Delta\omega_a < \gamma$.

Le dénominateur résonnant des populations σ_{mm}^a (ou $\sigma_{\mu\mu}^b$) à l'ordre 2 est celui des cohérences optiques $\rho_{\mu=m\mp 1, m}^{b a}$ (ou $\rho_{\mu, m=\mu\mp 1}^{b a}$). Dans le cas des populations relatives à la transition $F_b=2 \leftrightarrow F_a=1$ de la raie D_1 du sodium ($g_b/g_a = -3$), nous avons obtenu de nombreux exemples de variations lorentziennes de largeur inférieure à γ .

Le dénominateur résonnant des cohérences $\sigma_{m, m'=m\mp 2}^a$ (ou $\sigma_{\mu, \mu'=\mu\mp 2}^b$) à l'ordre 2 est le produit d'un terme décrivant la précession de Larmor, de largeur γ (ou Γ), et d'un terme décrivant l'effet Zeeman, dont la largeur peut être inférieure à γ . Dans le cas d'une transition $J_b=0 \leftrightarrow J_a=1$ [18], la variation de l'alignement de l'état excité résulte de 2 termes de largeur γ dont le produit a une largeur voisine de $\gamma/2$. Il en est de même pour toute transition vers un niveau excité $J_a=1$, l'alignement étant uniquement représenté par la cohérence Zeeman σ_{-11}^a couplée aux seules cohérences optiques $\rho_{0\mp 1}^{b a}$. Mais dans le cas d'un niveau excité $J_a=2$, la cohérence Zeeman σ_{02}^a contribue à l'alignement. Cette cohérence est construite en partie à partir de la cohérence optique ρ_{12}^{ba} , à laquelle correspond un terme de largeur $\gamma(2 - g_b/g_a)^{-1}$. Par exemple, pour la transition $F_b=1 \leftrightarrow F_a=2$ de la raie D_1 du sodium ($g_b/g_a = -3$), cette largeur serait $\gamma/5$: La largeur associée à la variation globale de la cohérence σ_{02}^a serait donc inférieure à $\gamma/2$.

4-2-2 Effets non-linéaires.

a - Ordre 4.

Les termes d'ordre 4 résultent d'un processus d'absorption suivi d'un processus d'émission stimulée, ou encore de 2 processus d'absorption successifs. Un premier exemple d'effet d'ordre 4 est la création d'un moment hexadécapolaire électrique dans l'état fondamental (Fig. 14).

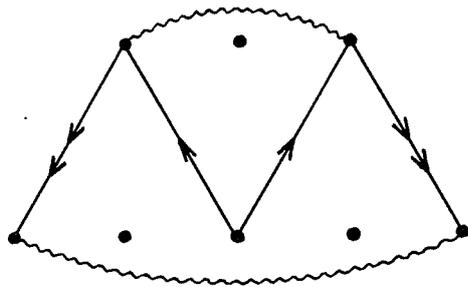


Figure 14

La cohérence Zeeman σ_{-22}^b est construite à partir de la cohérence optique ρ_{-12}^{ab} (apparaissant à l'ordre 3) caractéristique d'un moment optique octupolaire.

On déduit de (20i, m) :

$$\sigma_{-22}^b(4) = -i \tilde{\Omega} \frac{2}{\sqrt{5}} \rho_{-12}^{ab(3)} \frac{1}{\Gamma - 4i \omega_b} \quad (41)$$

$$\rho_{-12}^{ab(3)} = -i \tilde{\Omega} \left[\frac{1}{\sqrt{5}} \sigma_{-11}^a(2) - \frac{1}{\sqrt{30}} \sigma_{02}^b(2) \right] \frac{1}{\frac{\gamma}{2} - i(2\omega_b + \omega_a)} \quad (42)$$

L'expression (42) indique que le moment hexadécapolaire est issu de l'alignement de l'état excité (Fig. 14) mais aussi de celui de l'état

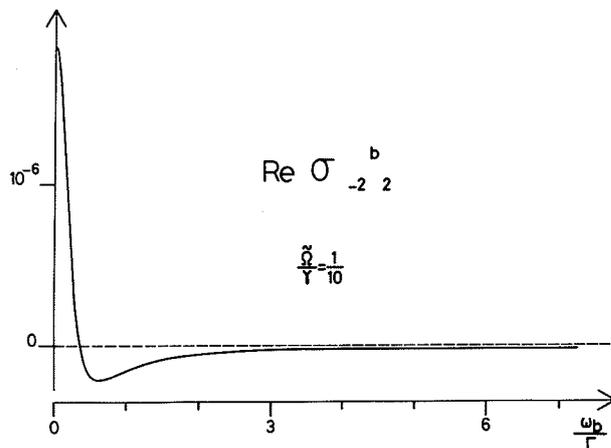


Figure 15

fondamental. Les probabilités de transition relatives (Fig. 4) sont telles qu'à l'ordre 4, la majeure partie de l'alignement de l'état excité est transférée vers le moment hexadécapolaire de l'état fondamental. La fréquence de précession de σ_{-22}^b étant $4\omega_b$, la largeur de la courbe $\text{Re } \sigma_{-22}^b(H)$ à faible intensité lumineuse (Fig. 15) est $\Delta\omega_b \approx \Gamma/2$, contre $\Delta\omega_b \approx \Gamma$ pour $\text{Re } \sigma_{-11}^b(H)$ (Fig. 8).

La Figure 16 représente le couplage de la cohérence σ_{-11}^a (2)

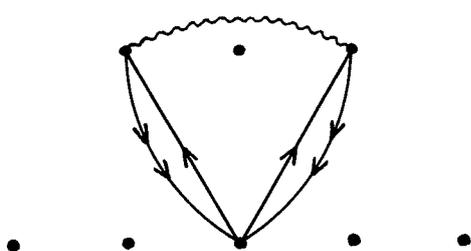


Figure 16

induite à l'ordre 2 avec la population σ_{00}^b . Dans le cas du pompage en raie large d'une transition $J_b=0 \longleftrightarrow J_a=1$, cet effet constitue à l'ordre 4 la seule cause de la variation de σ_{00}^b avec H . Cette variation est alors d'origine purement non-linéaire ("résonance de saturation") et possède une forme lorentzienne [3]. Ici, le terme

d'ordre 4 possède un dénominateur en $(\frac{\gamma^2}{4} + \omega_a^2)^3$, auquel correspond une largeur du même ordre que celle du pic central de $\sigma_{00}^b(2)$. En conséquence, la forme de la courbe $\sigma_{00}^b(H)$ est très peu modifiée : si l'on adapte les échelles verticales, la courbe calculée pour $\tilde{\Omega}/\gamma = 1$ se superpose exactement à la courbe calculée pour $\tilde{\Omega}/\gamma = 1/10$ (Fig. 13), alors que la courbe calculée pour $\tilde{\Omega}/\gamma = 3$ ne présente qu'un léger élargissement. Notons que pour un niveau $F_b=2$, σ_{00}^b est également couplée à l'ordre 4 avec $\sigma_{02}^b(2)$. Ce couplage, qui pourrait donner lieu à une résonance étroite négative dans la courbe $\sigma_{00}^b(H)$, n'y crée pas non plus de modification visible.

Nous montrons sur la Figure 17 le processus symétrique de celui de la Figure 16, couplant la cohérence $\sigma_{-11}^b(2)$ à la population σ_{00}^a . Le terme d'ordre 4 possède cette fois un dénominateur en

$(\frac{\gamma^2}{4} + \omega_b^2)^2 (\frac{\Gamma^2}{4} + \omega_b^2)$, auquel correspond une largeur de l'ordre de Γ .

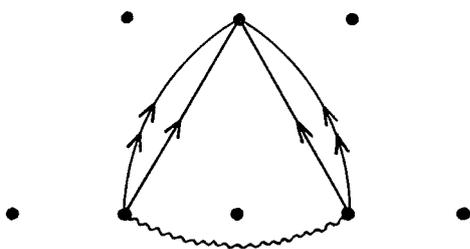


Figure 17

origine l'alignement de l'état fondamental.

La situation est analogue en ce qui concerne la population σ_{11}^a , couplée à $\sigma_{02}^{b(2)}$ (le diagramme correspondant serait décalé d'un sous-niveau Zeeman par rapport à la Figure 17). Aussi, il apparaît dans la courbe $\sigma_{00}^a(H)$ et dans la courbe $\sigma_{11}^a(H)$ (Fig. 18) une résonance étroite négative ayant pour

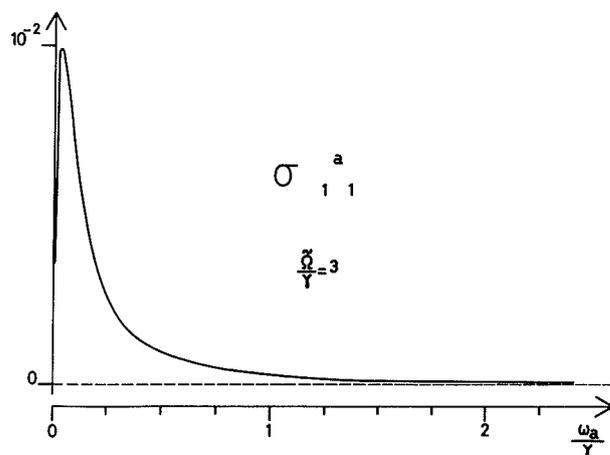


Figure 18

Il se produit en outre à l'ordre 4 un couplage entre les alignements d'ordre 2 des états a et

b (Fig. 19). Il en résulte dans la courbe $\text{Re } \sigma_{-11}^a(H)$ la superposition à la résonance initiale d'une résonance étroite (largeur $\sim \Gamma$) et de signe opposé (Fig. 20).

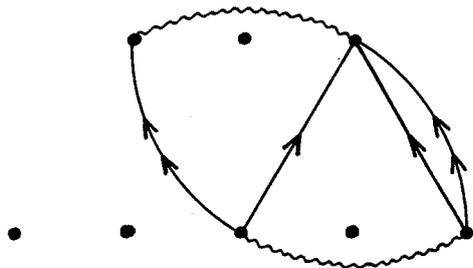


Figure 19

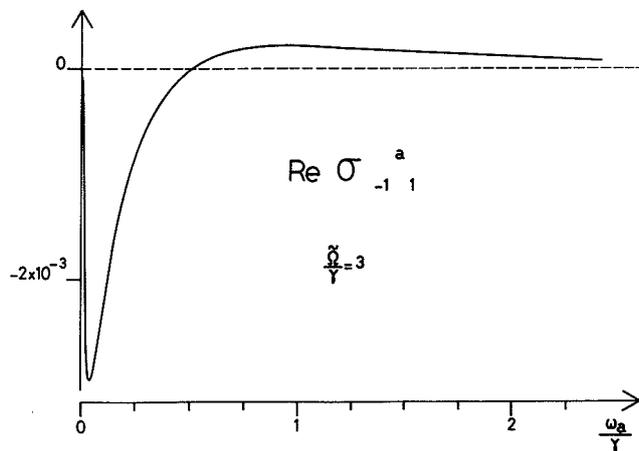


Figure 20

b - Ordres supérieurs.

Le diagramme de la Figure 21 fait intervenir 3 interactions avec le rayonnement. Il décrit le couplage à l'ordre 6 de la cohérence

σ_{-22}^b (4) avec l'alignement de l'état excité. Ce processus est à l'origine d'une résonance hexadécapolaire, encore plus étroite (largeur $\sim \Gamma/2$) et inversée par rapport à la résonance quadrupolaire, dans la courbe $\text{Re } \sigma_{-11}^a(H)$ (Fig. 22).

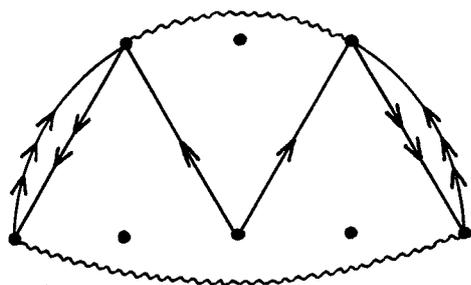


Figure 21

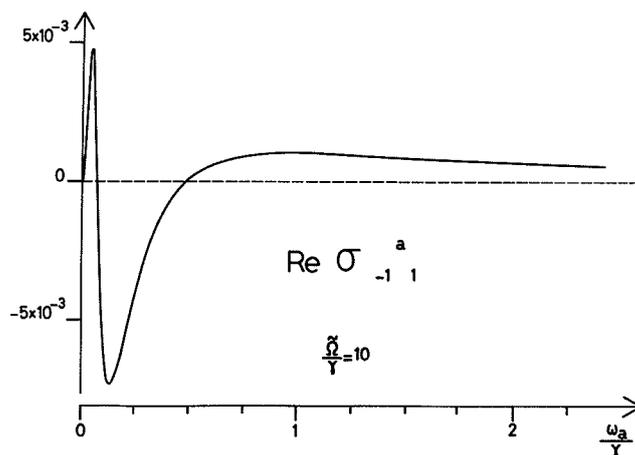


Figure 22

Puisque l'alignement de l'état excité est couplé à la population σ_{00}^b par un processus d'émission induite, on pourrait penser que les résonances précédentes se retrouveraient dans la courbe $\sigma_{00}^b(H)$ pour des intensités du rayonnement suffisamment élevées. La Figure 23 décrit par exemple un processus permettant le couplage à l'ordre 8 du moment hexadécapolaire de l'état fondamental avec σ_{00}^b . Ce couplage emprunte le chemin suivant : $\sigma_{-22}^b(4) \rightarrow \sigma_{-11}^a(6) \rightarrow \sigma_{00}^b(8)$.

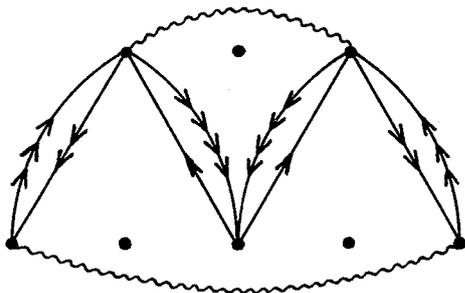


Figure 23

Un autre chemin est possible :

$$\sigma_{-22}^b(4) \rightarrow \sigma_{02}^b(6) \rightarrow \sigma_{00}^b(8)$$

Un chemin analogue à ce dernier conduit également à la population du niveau $\mu = 2$:

$$\sigma_{-22}^b(4) \rightarrow \sigma_{02}^b(6) \rightarrow \sigma_{22}^b(8)$$

En réalité, les courbes $\sigma_{00}^b(H)$ (Fig. 29) et $\sigma_{22}^b(H)$ sont

élargies aux fortes intensités, mais gardent approximativement la même forme. Nous verrons qu'il n'en est pas de même si l'on considère les solutions à un instant donné au lieu des solutions en régime stationnaire.

4-2-3 Limites du traitement perturbatif.

Nous avons, à titre d'exemple, calculé les expressions $\text{Re}(\sigma_{-11}^a(2) + \sigma_{-11}^a(4))$ et $\text{Re}\sigma_{-22}^b(4)$ représentant respectivement les grandeurs $\text{Re}\sigma_{-11}^a$ et $\text{Re}\sigma_{-22}^b$ au quatrième ordre de la théorie des perturbations. Nous ne donnerons pas ici les expressions analytiques obtenues, mais nous avons représenté les courbes de variation avec H qui en sont déduites, sur les Figures 24 et 25. Ces courbes sont comparées avec les courbes fournies par le calcul numérique exact. On remarque que si les résultats des deux calculs sont encore en bon accord pour $\tilde{\Omega}/\gamma = 1$, ils divergent nettement pour $\tilde{\Omega}/\gamma = 3$ (soit pour une puissance

lumineuse 9 fois plus élevée). La différence est particulièrement nette en ce qui concerne la cohérence σ_{-22}^b , pour laquelle le terme d'ordre 4 est le premier terme non nul du développement : l'amplitude de la courbe obtenue par la théorie des perturbations croît donc en $\tilde{\Omega}^4$ et sa forme n'est corrigée par aucun terme d'ordre supérieur. Pour les valeurs $\tilde{\Omega}/\gamma > 1$, il faudrait donc poursuivre le développement à un ordre plus élevé, au prix de calculs fastidieux. En outre, pour les plus fortes puissances accessibles à l'expérience ($\tilde{\Omega}/\gamma > 10$), la série ne serait probablement plus convergente.

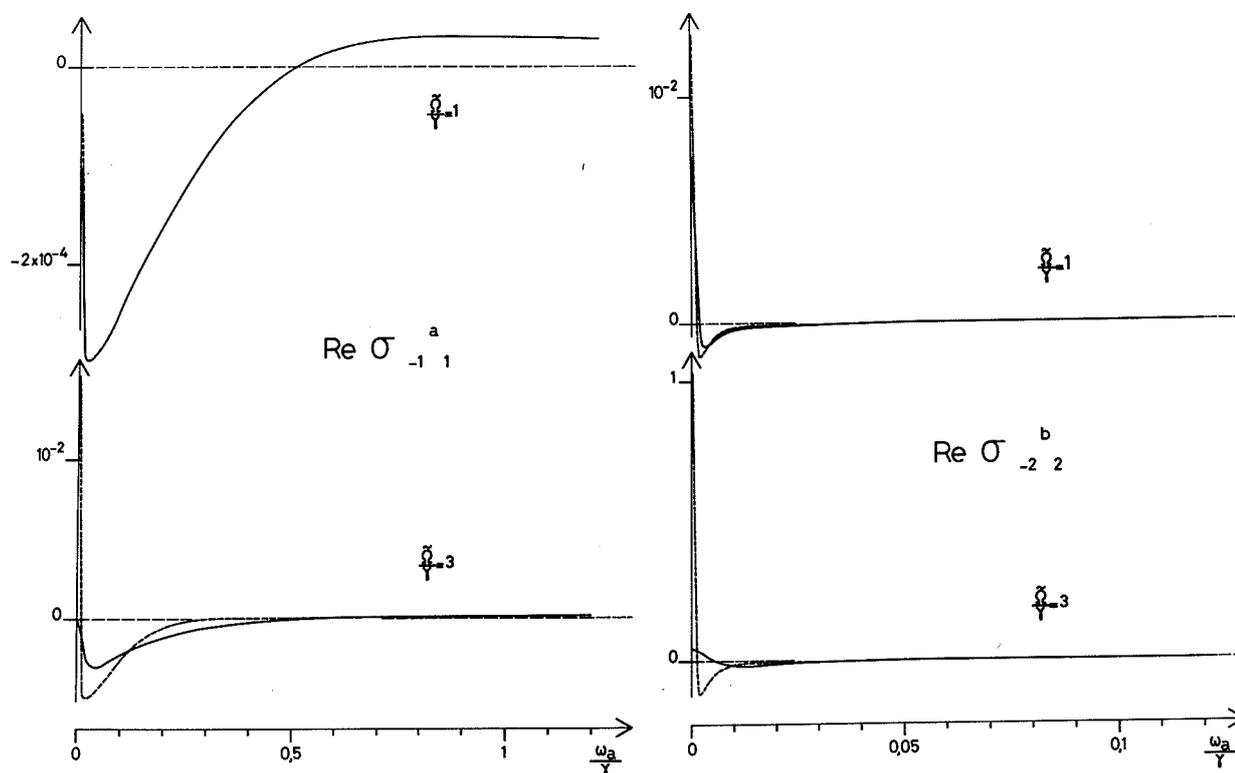


Fig. 24, 25 - Comparaison entre les résultats fournis par la théorie des perturbations au 4ème ordre (courbes en trait pointillé) et par le calcul numérique exact (courbes en trait plein).

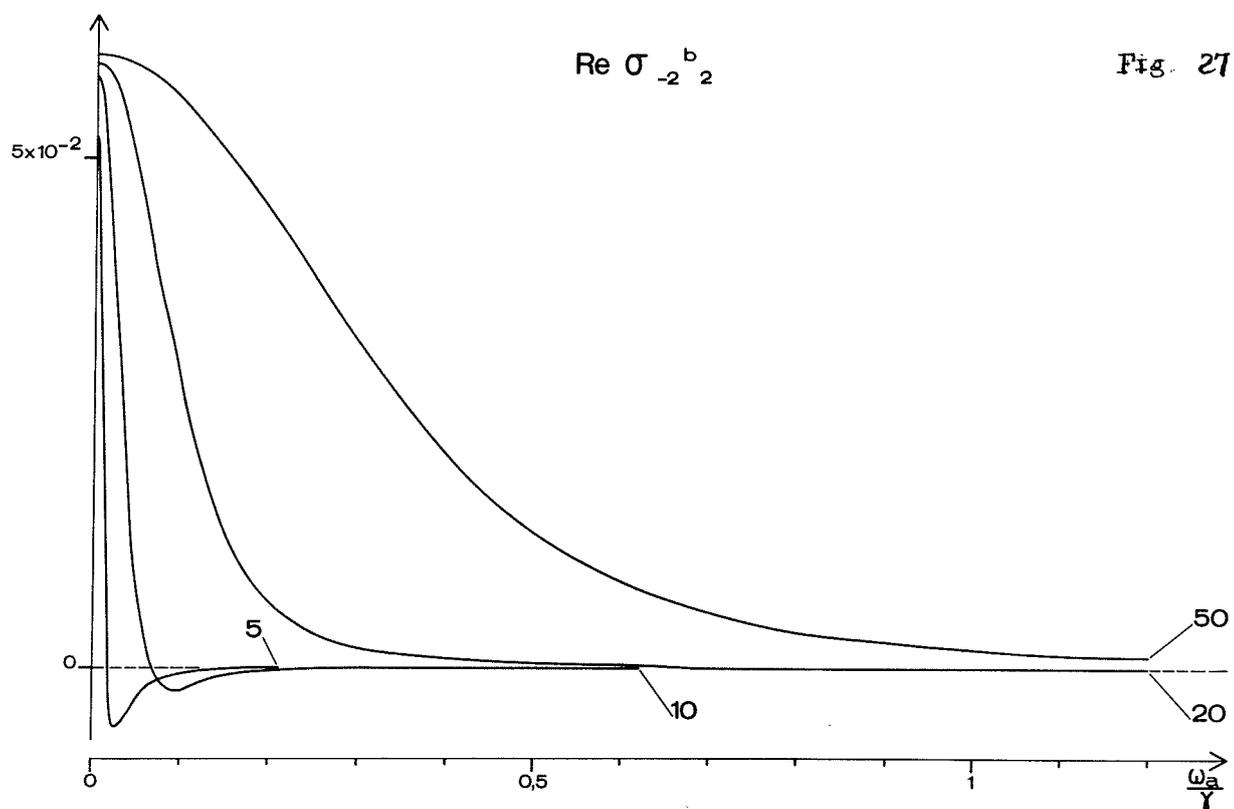
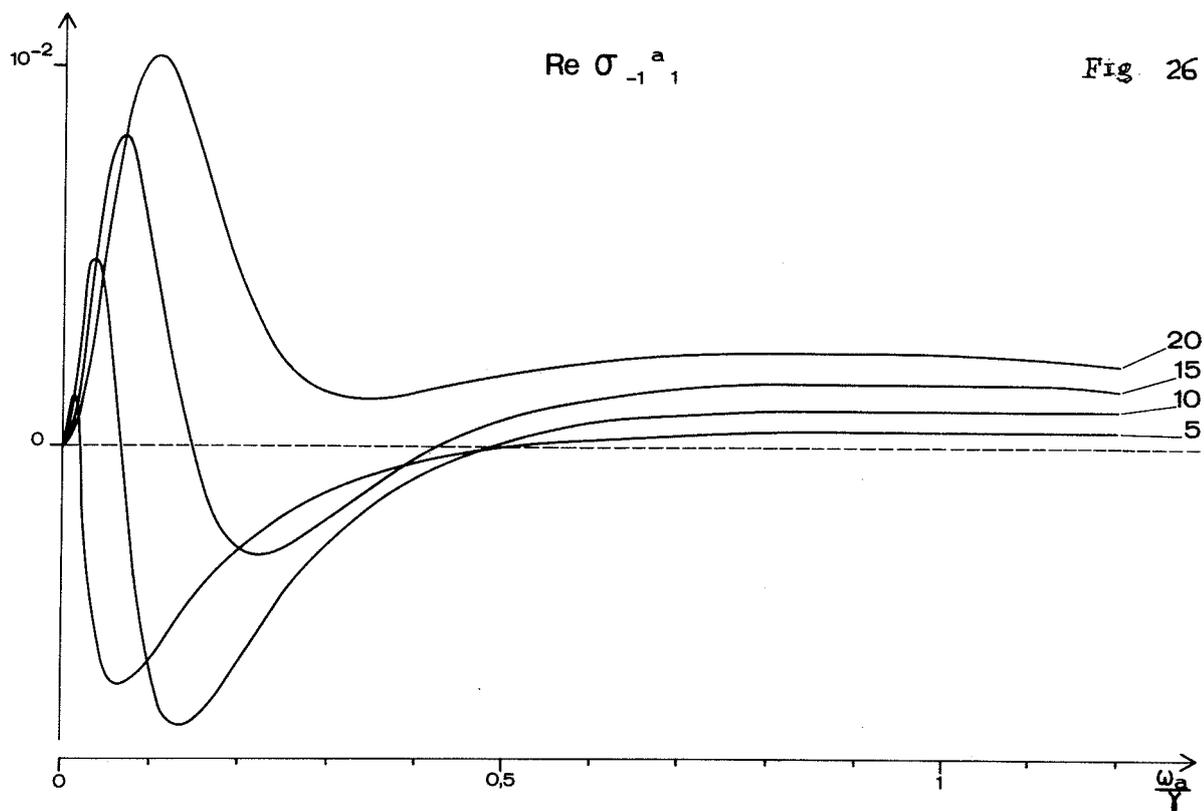
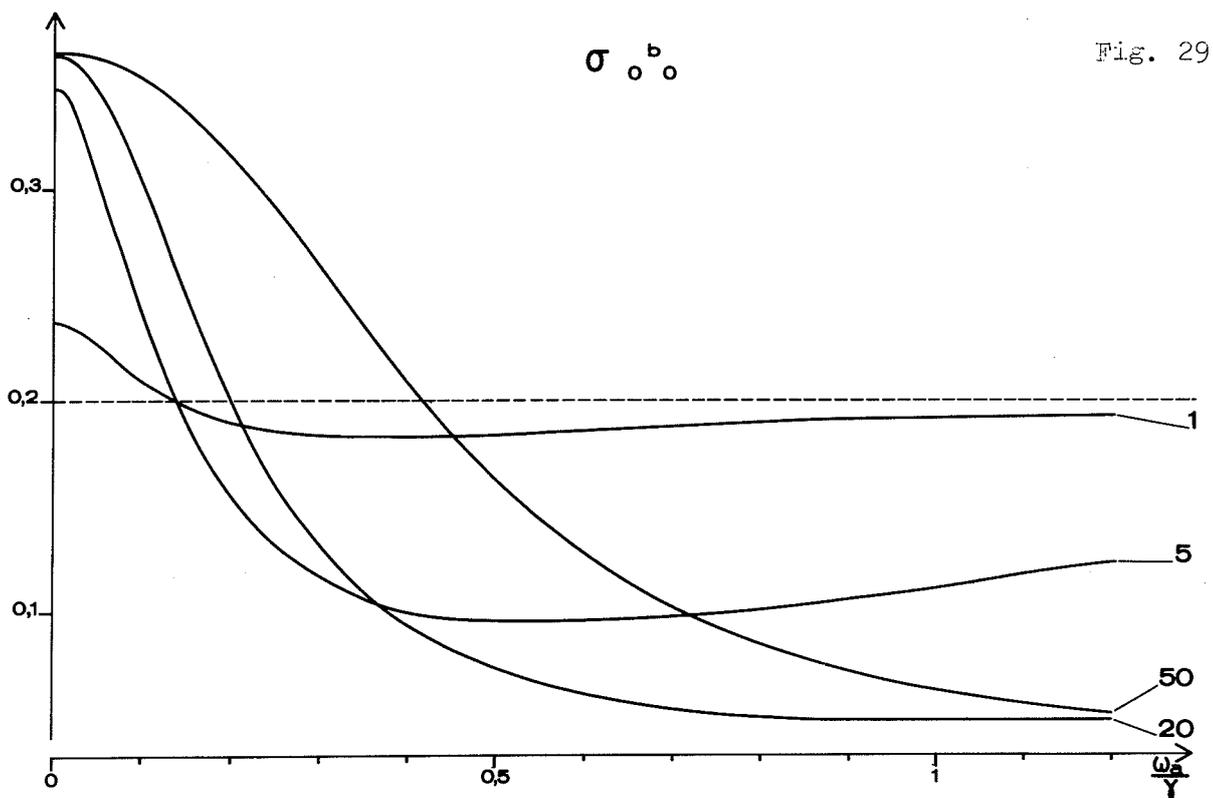
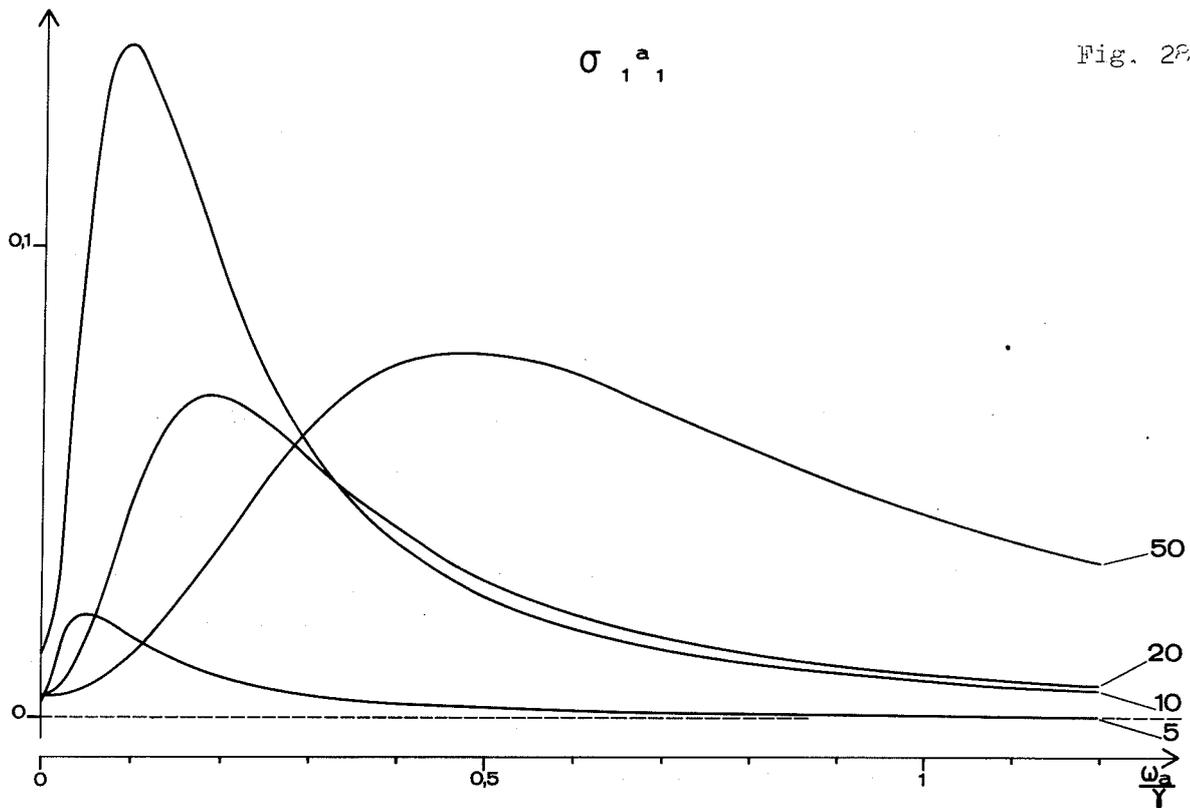


Fig. 26 à 29 - Courbes théoriques de variation avec le champ magnétique, pour diverses intensités lumineuses, de 4 éléments de la matrice densité décrivant typiquement l'état stationnaire du système atomique ($F_b=2$, $F_a=1$) en présence d'un rayonnement ...



... de polarisation σ linéaire, monochromatique, résonnant, très intense.

Les valeurs des paramètres adoptées pour le calcul numérique sont, comme dans les figures précédentes : $g_b/g_a = -3$, $\gamma/\Gamma = 100$, $N=1$.

4-3 RESULTATS OBTENUS A FORTE INTENSITE DU RAYONNEMENT.

Les Figures 26 à 29 représentent les variations en fonction du champ magnétique de 4 grandeurs typiques : l'alignement de l'état excité et le moment hexadécapolaire de l'état fondamental, les populations σ_{11}^a de l'état excité et σ_{00}^b de l'état fondamental. Nous avons représenté les courbes obtenues à partir de la résolution numérique pour diverses valeurs du paramètre $\tilde{\Omega}/\gamma$ supérieures à 1, pour lesquelles nous savons la théorie des perturbations difficilement applicable ¹⁾. Par suite du phénomène de saturation qui limite leur amplitude, il est alors possible de faire figurer les courbes représentant une grandeur donnée à la même échelle. Nous avons préféré montrer en détails la zone voisine du champ magnétique nul ($|\omega_a| \lesssim \gamma$). Au delà, à cause de la monochromaticité du rayonnement, les cohérences Zeeman tendent vers 0, les populations de l'état excité vers 0 et les populations de l'état fondamental vers $n=0,2$.

L'élargissement radiatif est particulièrement spectaculaire en ce qui concerne les résonances issues de l'évolution des cohérences de l'état fondamental. Par exemple, alors que la largeur de la courbe $\text{Re } \sigma_{-22}^b(H)$ est encore de l'ordre de $\Gamma/2$ pour $\tilde{\Omega}/\gamma = 1$ (Fig. 25), elle devient de l'ordre de $\gamma/5$ pour $\tilde{\Omega}/\gamma = 20$ (Fig. 27). Ce phénomène est dû aux nombreux couplages qui se produisent entre l'état fondamental et l'état excité pour les intensités élevées. Il n'existe plus alors de grandeurs qui caractérisent l'un ou l'autre de ces états. Dans le cas de la courbe $\text{Re } \sigma_{-11}^a(H)$, la Figure 26 montre que les deux résonances originaires de l'état fondamental prennent une importance croissante lorsque l'intensité augmente. Pour $\tilde{\Omega}/\gamma = 20$, la courbe ne coupe plus l'axe au voisinage de $\omega_a/\gamma = 1/2$: la résonance initiale issue de l'évolution de l'alignement (non couplé) de l'état excité (Fig. 6) n'apparaît pratiquement plus.

1) Avec un laser à colorant monomode, on atteint aisément des intensités lumineuses telles que $\tilde{\Omega}/\gamma > 10$ (voir Sect. B).

Les populations sont également fortement perturbées par un rayonnement intense. Alors que la population σ_{00}^b en champ nul est très peu modifiée (2×10^{-3} en valeur relative) pour $\tilde{\Omega}/\gamma = 1/10$ (Fig. 13), elle est presque doublée pour $\tilde{\Omega}/\gamma = 20$ (Fig. 29). Du fait du couplage avec les cohérences hertziennes de l'état fondamental, ces modifications importantes peuvent néanmoins être détruites par des champs très faibles. Ainsi, pour $\tilde{\Omega}/\gamma = 20$, une variation du champ magnétique de $\omega_a/\gamma = 0$ à $\omega_a/\gamma = 1/20$ ($H \approx 2G$) suffit à faire passer la population σ_{11}^a d'environ $1/100$ à $1/10$ (Fig. 28). Pour interpréter une expérience dans laquelle le champ magnétique terrestre n'aurait pas été compensé, il serait donc imprudent de ne calculer que les populations en champ nul.

5 - CAS D'UN SYSTEME "OUVERT".

5-1 GENERALISATION DES EQUATIONS PRECEDENTES.

Le modèle théorique de la Figure 2 ne s'applique pas exactement au système que nous avons étudié expérimentalement. En effet, nous savons qu'il existe dans l'état fondamental des atomes alcalins une structure hyperfine qui est à l'origine d'un pompage optique hyperfin. La modification du calcul généralise celle que nous avons effectuée au Chapitre II (A-4-1) dans le cas de niveaux sans structure Zeeman, lors du passage du système "fermé" au système "ouvert".

Nous considérons maintenant le système atomique représenté sur la Fig. 30. L'état fondamental se compose de 2 niveaux b et c de moment angulaire respectif F_b et F_c . L'état excité a possède un moment angulaire F_a . L'émission spontanée se produit de a vers b et de a vers c avec des taux respectifs γ_b et γ_c ($\gamma_b + \gamma_c = \gamma$). Le rayonnement est quasi-résonnant vis-à-vis de la transition $a \leftrightarrow b$. Nous supposons qu'il ne couple pas les niveaux a et c appréciablement ($|E_b - E_c| \gg \Omega$).

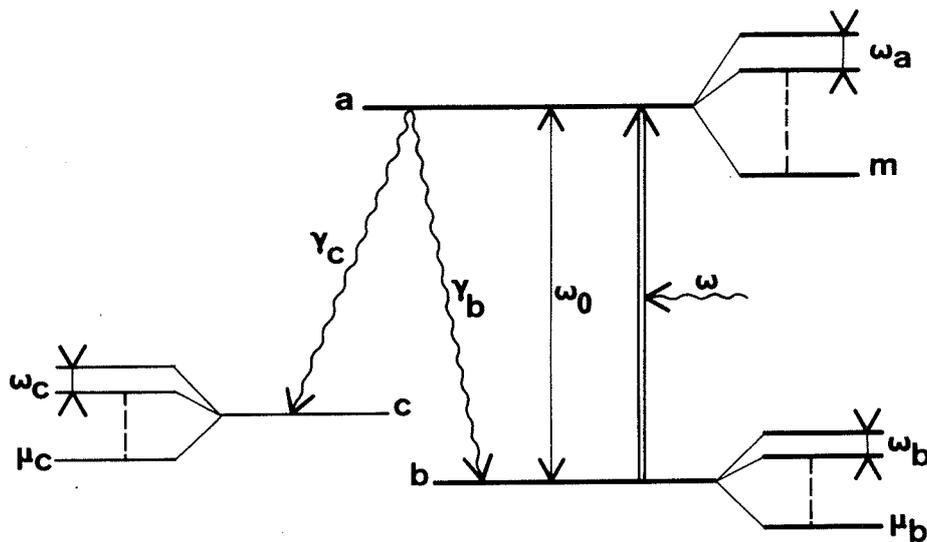


Fig. 30 - Système "ouvert" vis-à-vis de l'émission spontanée.

Nous savons qu'en régime stationnaire, les atomes s'accablent dans le niveau c par pompage optique. Il faudra par conséquent calculer la solution dépendant du temps associée au régime transitoire. Nous pourrons alors tenir compte de la durée limitée T de l'interaction sans qu'il soit nécessaire d'introduire la constante de relaxation Γ dans les "équations de Bloch optiques".

Les nouvelles équations (19') décrivant l'évolution des éléments de la matrice densité en présence d'un rayonnement monochromatique de polarisation σ_x sont obtenues à partir du système (19) en y faisant $\Gamma = 0$, remplaçant γ par γ_b dans (19b) et ajoutant l'équation

suivante (qui traduit le transfert par émission spontanée de a vers c) :

$$\dot{\sigma}_{\mu\mu'}^c = \gamma_c (2F_a + 1) (-1)^{2J_c - \mu - \mu'} \sum_m C_{m=\mu+q, \mu}^{a c} C_{m'=\mu'+q, \mu'}^{a c} \sigma_{m=\mu+q, m'=\mu'+q}^a \quad (19'd)$$

Les populations de l'état fondamental de l'atome non perturbé n'apparaissent plus dans l'équation (19'b) mais seront introduites dans les conditions initiales. A l'instant $t=0$, les seuls éléments de matrice non nuls sont :

$$\sigma_{\mu\mu}^b(0) = \sigma_{\mu'\mu'}^c(0) = \frac{N}{(2F_b + 1) + (2F_c + 1)} \quad (43)$$

5-2 APPLICATION A UNE TRANSITION HYPERFINE DU SODIUM.

Considérons le cas particulier où le laser est accordé à la transition $F_b=2 \longleftrightarrow F_a=1$ de la raie D_1 du sodium. Le second niveau hyperfin de l'état fondamental est $F_c=1$. On a dans cet exemple $\gamma_b = (5/6)\gamma$ et $\gamma_c = (1/6)\gamma$ (voir Fig. II-14). Le système (20') des équations relatives à cet ensemble de niveaux est le système (20) où l'on fait $\Gamma=0$, change γ en γ_b dans les équations (20d) à (20h), et ajoute les 3 équations :

$$\dot{\sigma}_{00}^c = 3\gamma_c \frac{1}{3} \sigma_{11}^a \quad , \quad (20'n)$$

$$\dot{\sigma}_{11}^c = 3\gamma_c \left[\frac{1}{6} \sigma_{11}^a + \frac{1}{6} \sigma_{00}^a \right] \quad , \quad (20'o)$$

$$\dot{\sigma}_{-11}^c = 2i \omega_c \sigma_{-11}^c + 3\gamma_c \frac{1}{6} \sigma_{-11}^a \quad . \quad (20'p)$$

L'équation (20'p) montre que de l'alignement est introduit dans le niveau c par la seule émission spontanée. Dans l'exemple que nous considérons, les fréquences de précession $2\omega_b$ et $2\omega_c$ des alignements des niveaux b et c de l'état fondamental sont égales (pour

le sodium, les facteurs de Landé des niveaux hyperfins $F_b=2$ et $F_c=1$ sont $g_b = 1/2$ et $g_c = -1/2$, mais cela n'est en général pas le cas.

En annulant le premier membre des équations (20'), on trouve immédiatement que les seuls éléments de la matrice densité non nuls en régime stationnaire sont les populations $\sigma_{-1-1}^c(\infty)$, $\sigma_{11}^c(\infty)$ et $\sigma_{00}^c(\infty)$ des sous-niveaux Zeeman de c . Mais il n'existe aucune relation de phase entre ces derniers puisque $\sigma_{-11}^c(\infty) = 0$.

Pour obtenir la solution dépendant du temps, il faut résoudre le système différentiel linéaire à coefficients constants des 21 équations (compte tenu des éléments complexes conjugués) représentées par les équations (20'a) à (20'm). Il est commode, en passant aux parties réelles et imaginaires, de transformer ce système en un système à coefficients réels r_{ij} de 21 fonctions $x_i(t)$ à valeurs réelles. La solution de ce système est de la forme

$$x_i(t) = \sum_{q=1}^{21} \zeta_i^q e^{\lambda_q t} \quad (44)$$

Les coefficients réels négatifs λ_q sont les valeurs propres de la matrice des r_{ij} . La durée du régime transitoire est imposée par le coefficient λ_q le plus petit en valeur absolue. Les coefficients ζ_i^q sont déterminés à partir des conditions initiales : les seules valeurs $x_i(0)$ différentes de zéro correspondent aux populations de l'état fondamental, égales à $N/8$. Connaissant les fonctions $x_i(t)$, la résolution des équations (20'n) à (20'p) est immédiate. Nous avons été amenés à calculer l'intégrale de fonctions $x_i(t)$ relatives à l'état excité :

$$\int_0^T x_i(t) dt = \sum_{q=1}^{21} \frac{\zeta_i^q}{(-\lambda_q)} (1 - e^{\lambda_q T}) \quad (45)$$

Le calcul des coefficients λ_q et ζ_i^q et des expressions du type (44) et (45) a été effectué numériquement.

5-3 DISCUSSION DES RESULTATS.

Nous donnerons dans la section B des exemples de résultats du calcul pour la transition $F_b=2 \longleftrightarrow F_a=1$ du sodium et nous les comparerons aux résultats expérimentaux. La généralisation que nous venons d'exposer permet de traiter deux types d'effets qui modifient la forme des courbes de variation avec le champ magnétique. En changeant les équations pour introduire le niveau c , nous faisons apparaître des effets de pompage optique. En calculant la solution dépendant du temps, nous pouvons déceler à un instant $t=T$ des effets dont la largeur est de l'ordre de $1/T$, mais qui disparaissent dans la solution aux temps infinis.

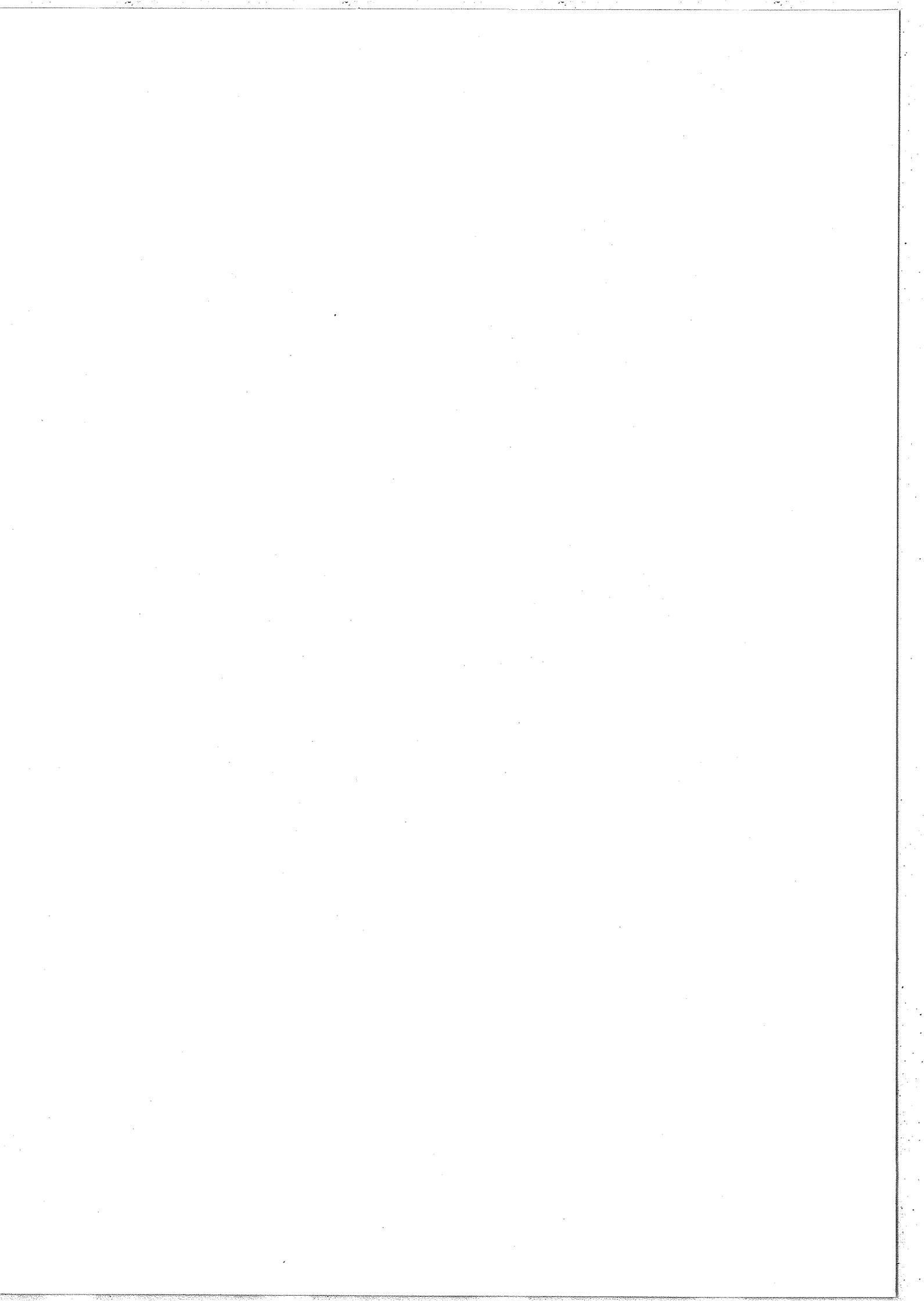
Dans les expériences de détection optique (B-1), le signal s'exprime comme une intégrale de 0 à T d'une combinaison linéaire des populations et de l'alignement de l'état excité. La partie du signal d'effet Hanle relative à l'alignement est proportionnelle à :

$$s(H) = \int_0^T \text{Re } \sigma_{-11}^a(t, H) dt \quad (46)$$

Si l'on supposait le système "fermé" vis-à-vis de l'émission spontanée, on pourrait pour $T \gg \tau$ utiliser l'expression approchée de (46) :

$$s_{\text{fer}}(H) \approx T \text{Re } \sigma_{-11}^a(\infty, H) \quad (47)$$

Nous avons comparé les courbes de variation avec le champ magnétique respectivement obtenues en introduisant dans (46) la solution $\sigma_{-11}^a(t)$ du système (20') (courbe (a)) et dans (47) la solution stationnaire $\sigma_{-11}^a(\infty)$ du système (20) (courbe (b)). Pour que la comparaison soit significative, il faut évidemment utiliser dans les deux cas les mêmes valeurs de γ , de T (qui intervient sous la forme $\Gamma = T^{-1}$ dans le système (20)) et des populations initiales des sous-niveaux Zeeman. Nous avons choisi comme précédemment $T/\tau = 100$. Pour $\tilde{\Omega}/\gamma \leq 1/2$, les courbes (a) et (b) coïncident parfaitement à condition de diviser l'amplitude des secondes par un coefficient convenable supérieur à 1



le moment hexadécapolaire de l'état fondamental dans une expérience de déviation magnétique (B-2).

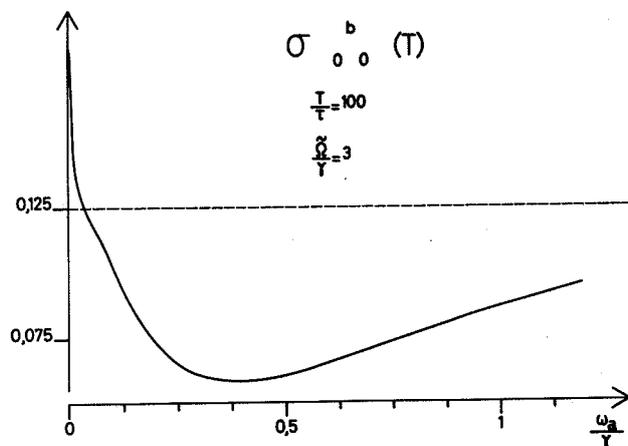


Figure 32

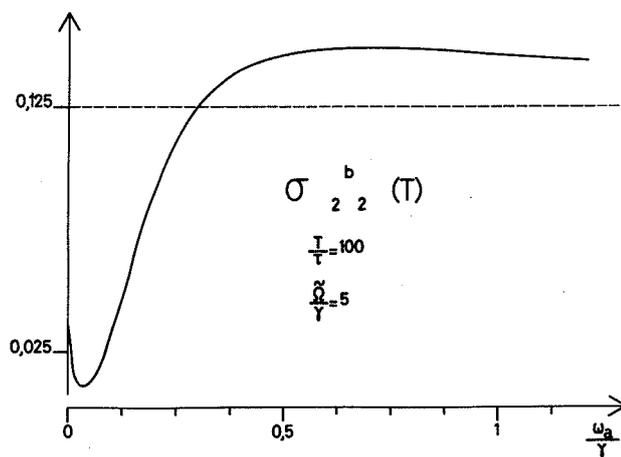
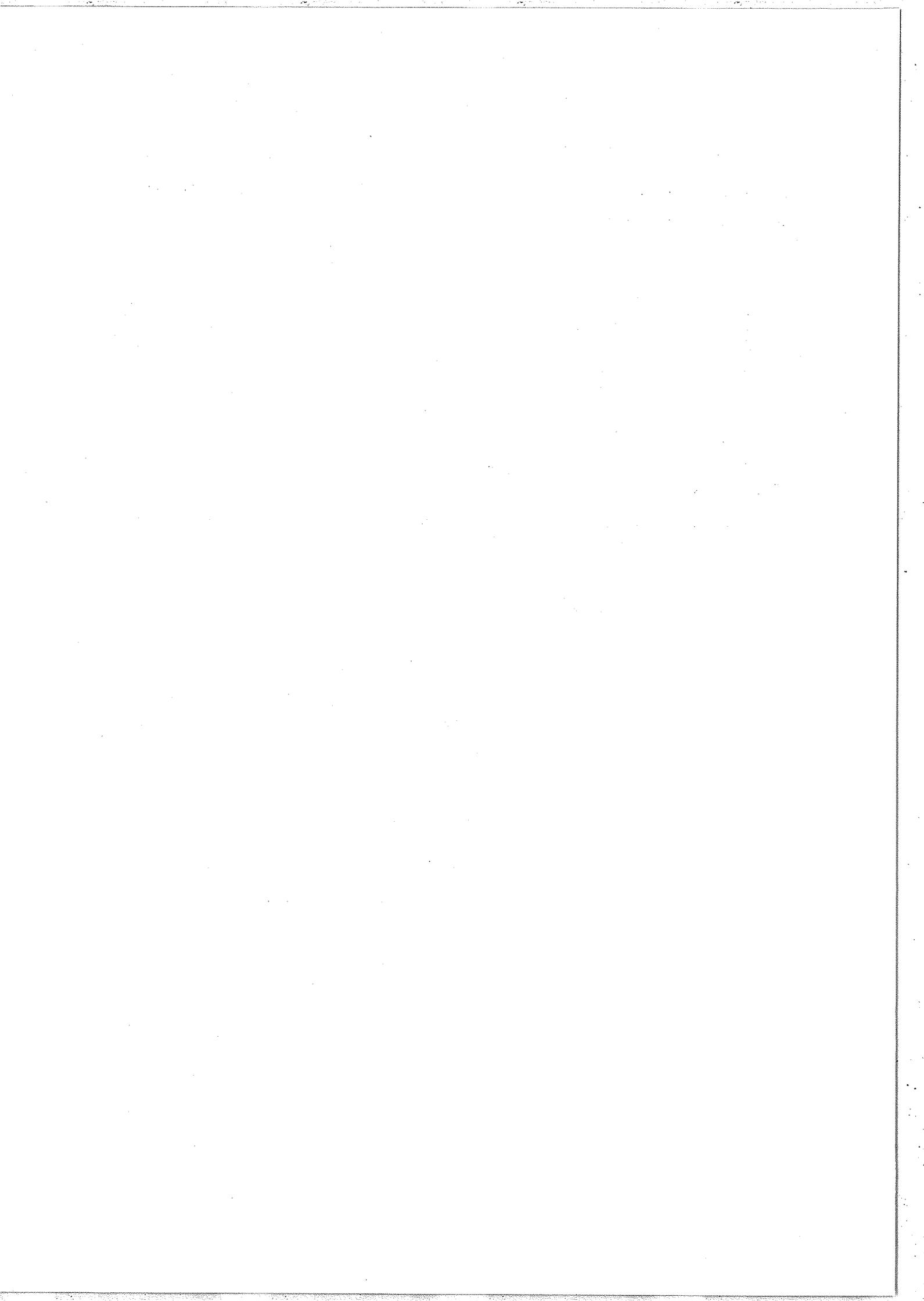


Figure 33



B - ETUDE EXPERIMENTALE

1 - DETECTION OPTIQUE (EFFET HANLE)

1-1 PRINCIPE DE L'EXPERIENCE.

La Figure 34 complète la Figure 1, en précisant la partie détection de l'expérience. La lumière de fluorescence du jet atomique est détectée avec la polarisation linéaire σ_y dans la direction Ox.

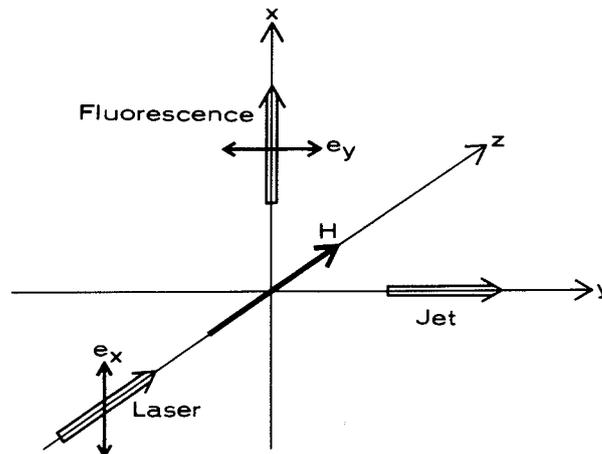


Fig. 34 - Disposition géométrique employée pour l'observation de l'effet Hanle.

orthogonale à la fois au faisceau laser et au jet atomique. Le signal est enregistré en fonction du champ magnétique, déplacé au voisinage du champ nul. Il s'agit du montage classique permettant d'observer l'effet Hanle associé aux croisements de niveaux $\Delta m = 2$.

1-2 SIGNAL DE DETECTION.

Nous rappelons que la lumière de fluorescence $L(\vec{e}_\lambda, t)$ émise à l'instant t dans une direction donnée et avec une polarisation \vec{e}_λ est décrite dans le formalisme de la matrice densité par l'expression [15] :

$$L(\vec{e}_\lambda, t) \propto \text{Tr } \sigma_a(t) \Lambda_\lambda, \quad (48)$$

où σ_a est la matrice densité réduite à l'état excité et Λ_λ l'opérateur de détection :

$$\Lambda_\lambda = \sum_{\mu} D_\lambda |\mu\rangle \langle \mu| D_\lambda. \quad (49)$$

Sous forme développée, (48) s'écrit encore :

$$L(\vec{e}_\lambda, t) \propto \sum_{mm'} \sigma_{mm'}^a(t) \langle m' | D_\lambda | \mu \rangle \langle \mu | D_\lambda | m \rangle. \quad (50)$$

Dans le cas d'une détection de polarisation σ_y :

$$D_\lambda = \frac{i}{\sqrt{2}} (D_1^{(1)} + D_{-1}^{(1)}). \quad \text{La partie angulaire des éléments de}$$

matrice intervenant dans (50) est décrite par (9) et (10).

Revenons à l'exemple d'une transition $F_b=2 \longleftrightarrow F_a=1$. On obtiendrait pour un système fermé du type Figure 2, à partir des coefficients $3j$ indiqués sur la Figure 4 :

$$L(\vec{e}_y) \propto 6 \sigma_{00}^a + 7 \sigma_{-1-1}^a + 7 \sigma_{11}^a - 2 \text{Re } \sigma_{-11}^a, \quad (51)$$

soit encore pour $\omega = \omega_0$:

$$L(\vec{e}_y) \propto 3 \sigma_{00}^a + 7 \sigma_{11}^a - \text{Re } \sigma_{-11}^a. \quad (52)$$

En réalité, dans le cas de la raie D_1 du sodium, le système qui nous intéresse est du type Figure 30. L'émission spontanée se produit depuis le niveau $F_a=1$ vers les niveaux $F_b=2$ et $F_c=1$, avec des probabilités dans le rapport $\gamma_c/\gamma_b = 1/5$. Dans (50), la sommation sur μ s'applique aux sous-niveaux des niveaux b et c :

$$L(\vec{e}_y) \propto (6 + \frac{1}{5}10) \sigma_{00}^a + (7 + \frac{1}{5}5) \sigma_{-1-1}^a + (7 + \frac{1}{5}5) \sigma_{11}^a - 2(1 + \frac{1}{5}5) \sigma_{-11}^a, \quad (53)$$

soit encore, pour $\omega = \omega_0$:

$$L(\vec{e}_y) \propto 2 \sigma_{00}^a + 4 \sigma_{11}^a - \text{Re} \sigma_{-11}^a. \quad (54)$$

Nous avons discuté précédemment (A-5-3) l'effet de l'existence d'un second niveau c de l'état fondamental sur la partie excitation de l'expérience. La comparaison des expressions (52) et (54) montre que l'existence de ce niveau modifie fortement la partie détection. Il modifie notablement le poids respectif des populations et de l'alignement dans le signal d'effet Hanle ¹⁾.

Dans nos expériences, nous recueillons la fluorescence issue de l'ensemble de la zone illuminée par le faisceau laser. Le signal est alors :

$$S \propto \int_0^T L(\vec{e}_y, t) dt, \quad (55)$$

soit :

$$S \propto \int_0^T [2 \sigma_{00}^a(t) + 4 \sigma_{11}^a(t) - \text{Re} \sigma_{-11}^a(t)] dt. \quad (56)$$

1) Le signal $L(\vec{e}_x)$ est obtenu en remplaçant le signe $-$ par un signe $+$ dans les équations (51) à (54). En mesurant $L(\vec{e}_x) - L(\vec{e}_y)$, on obtiendrait donc un signal proportionnel au seul alignement.

1-3 DESCRIPTION DE L'EXPERIENCE.1-3-1 Dispositif expérimental.

Le montage expérimental est décrit par la Figure 35. Le faisceau issu du laser à colorant SP est divisé en un faisceau principal utilisé pour l'expérience proprement dite ("faisceau de pompage") et un faisceau annexe utilisé pour la stabilisation du laser au centre de la raie étudiée ("faisceau d'asservissement"). Ces deux faisceaux rencontrent le jet atomique de sodium à angle droit. La puissance du faisceau annexe est limitée à une très faible partie de la puissance délivrée par le laser. L'asservissement est effectué à partir de la fluorescence du jet produite par ce faisceau (voir I-B-2-2). La puissance du faisceau principal peut être changée à l'aide d'un jeu d'atténuateurs étalonnés.

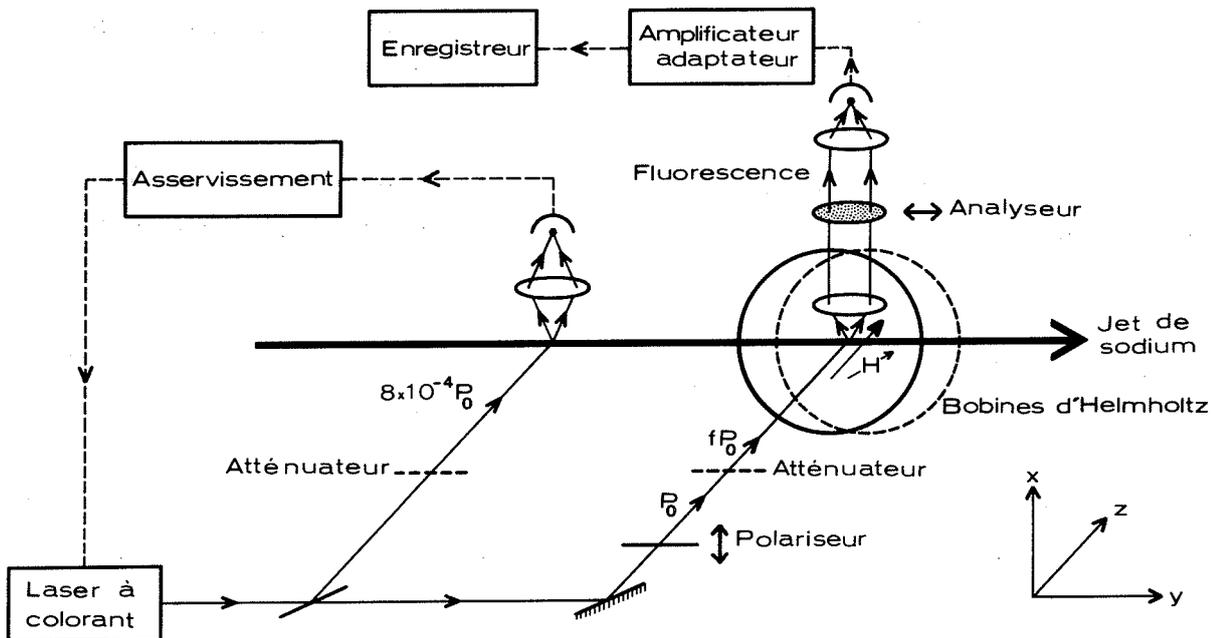


Fig. 35 - Représentation schématique du montage expérimental utilisé pour l'étude de l'effet Hanle.

Le champ magnétique H est créé dans la direction Oz par une paire de bobines d'Helmholtz de diamètre 26 cm. L'homogénéité de ce champ dans l'ensemble de la région d'interaction du jet atomique avec

le faisceau principal est meilleure que 1%. Le champ magnétique terrestre est compensé dans les directions O_x et O_y à l'aide de 2 paires de bobines d'Helmholtz de plus faible diamètre. L'ensemble du système permet d'annuler le champ magnétique sur l'ensemble du volume d'interaction à environ 10 milligauss près. Le champ H est balayé par variation linéaire du courant qui alimente les bobines d'Helmholtz principales. Il est étalonné avec une précision de 0,5% à l'aide d'un gaussmètre à effet Hall (Bell 640) muni d'une sonde adaptée aux champs faibles.

Le faisceau d'asservissement est placé en amont du faisceau de pompage, mais, par suite de sa faible intensité, ne perturbe pas appréciablement l'état des atomes au niveau de ce dernier. La distance des 2 faisceaux est suffisante pour que le point d'incidence du faisceau d'asservissement se trouve à l'extérieur des bobines d'Helmholtz, de façon à ce que la variation du champ magnétique ne produise pas de modification de la fluorescence induite par ce faisceau. Le réglage fin du parallélisme du faisceau d'asservissement et du faisceau de pompage est réalisé "par effet Doppler" : on enregistre simultanément en fonction de la fréquence du laser le signal de fluorescence fourni par chacun des faisceaux, et leur direction est ajustée de telle sorte que le centre des raies coïncide dans les deux spectres obtenus. On s'assure ainsi que le laser est bien stabilisé à la fréquence centrale de la transition, telle qu'elle est "vue" par le faisceau de pompage.

1-3-2 Données expérimentales.

Nous avons observé l'effet Hanle de nombreuses composantes hyper-fines des raies de résonance du sodium. Dans ces diverses expériences, la puissance délivrée par le laser à colorant monomode était fixée à 15 mW. Le faisceau de pompage, non focalisé, avait un diamètre de 2 mm. La puissance par unité de surface du rayonnement dans la région d'interaction prenait donc des valeurs égales à $P_0 \approx 0,5 \text{ W/cm}^2$ ou à certaines fractions f connues de P_0 . La puissance du faisceau d'asservissement restait constamment égale à $8 \times 10^{-4} P_0$.

Les Figures 36 et 37 fournissent quelques ordres de grandeurs expérimentaux. Il s'agit d'enregistrements de la fluorescence (en polarisation linéaire) du jet de sodium, obtenus respectivement sur la raie D_2 et la raie D_1 , pour une densité de puissance $P_0/30$. Dans la Figure 36-a, la fréquence du laser est déplacée à travers le groupe des composantes hyperfines de la raie D_2 issues du niveau $F_b=2$ de l'état fondamental. A cette intensité lumineuse, il se produit déjà un élargissement radiatif appréciable (Fig. II-13). Dans la Figure 36-b, le laser est stabilisé au sommet de la composante la plus intense $F_b=2 \leftrightarrow F_a=3$ et le champ magnétique est déplacé vers les champs positifs, à partir d'une valeur légèrement négative. On voit que plusieurs résonances apparaissent dans le signal d'effet Hanle. La variation du champ magnétique n'est pas tout à fait suffisante pour qu'on observe la résonance la plus large en entier: Par suite de la monochromaticité du

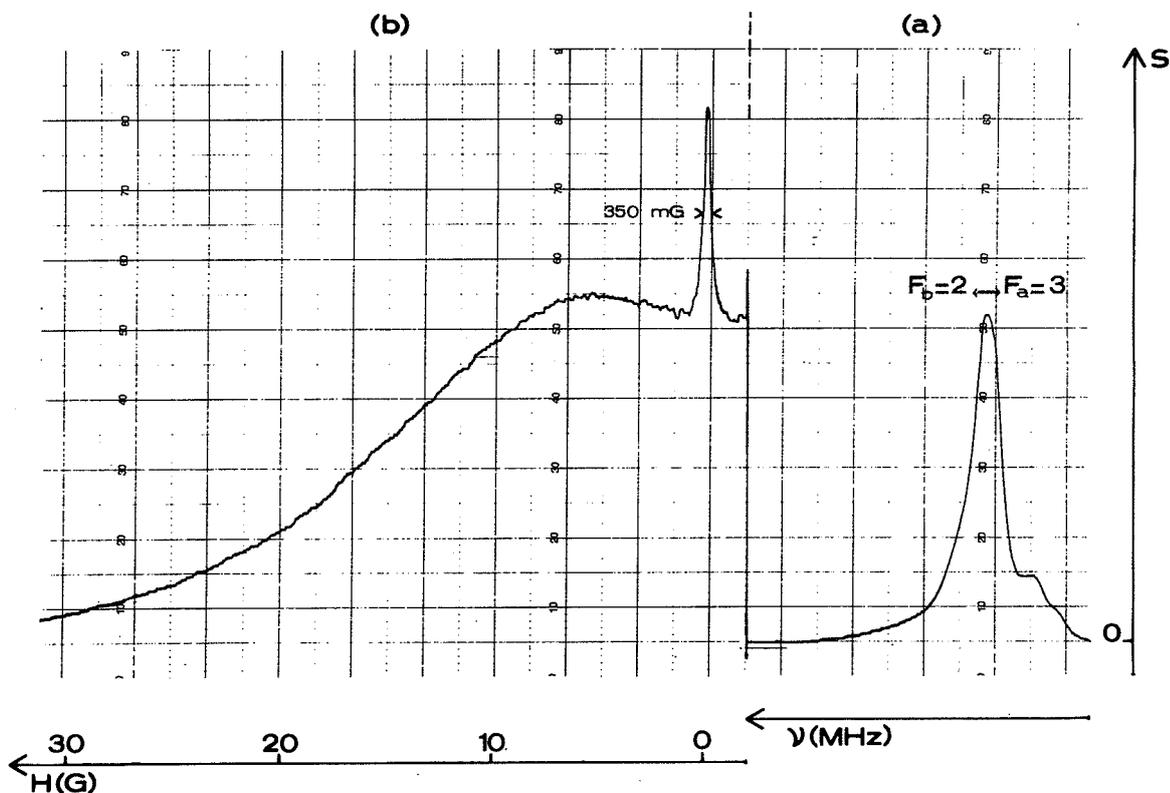


Fig. 36 - Enregistrement du signal de fluorescence, en polarisation σ_y , du jet de sodium (raie D_2): (a) en fonction de la fréquence du laser; (b) en fonction du champ magnétique, le laser étant stabilisé au sommet de la composante hyperfine $F_b=2 \leftrightarrow F_a=3$. $P=P_0/30$ ($P_0 \approx 0,5 \text{ W/cm}^2$). Durée du balayage magnétique: 4 min. Constante de temps de la détection: 0,3 s.

rayonnement, son amplitude totale est égale à celle du signal de résonance optique (Fig. 36-a). Il se superpose à cette résonance deux résonances étroites centrées sur le champ nul, l'une négative et l'autre positive. L'amplitude de la résonance positive est du même ordre de grandeur que l'amplitude du signal de résonance optique. Si on avait enregistré ce dernier en champ exactement nul, on aurait donc obtenu pour la raie $F_b=2 \leftrightarrow F_a=3$ une intensité nettement supérieure.

Dans le Figure 37-a, le laser est verrouillé au sommet de la composante $F_b=2 \leftrightarrow F_a=1$ de la raie D_1 . Le champ H est fixé à l'origine du balayage magnétique et on enregistre le signal en fonction du temps. Les variations de fréquence du laser sont inférieures à 1 MHz, avec la constante de temps de l'enregistrement. Les variations à court terme seraient de l'ordre de la largeur naturelle $\gamma = 10$ MHz de la raie. Dans la Figure 37-b, le champ magnétique est déplacé. Par rapport à la Figure 36-b, l'allure du signal d'effet Hanle est assez différente. On observe cette fois une résonance étroite unique négative.

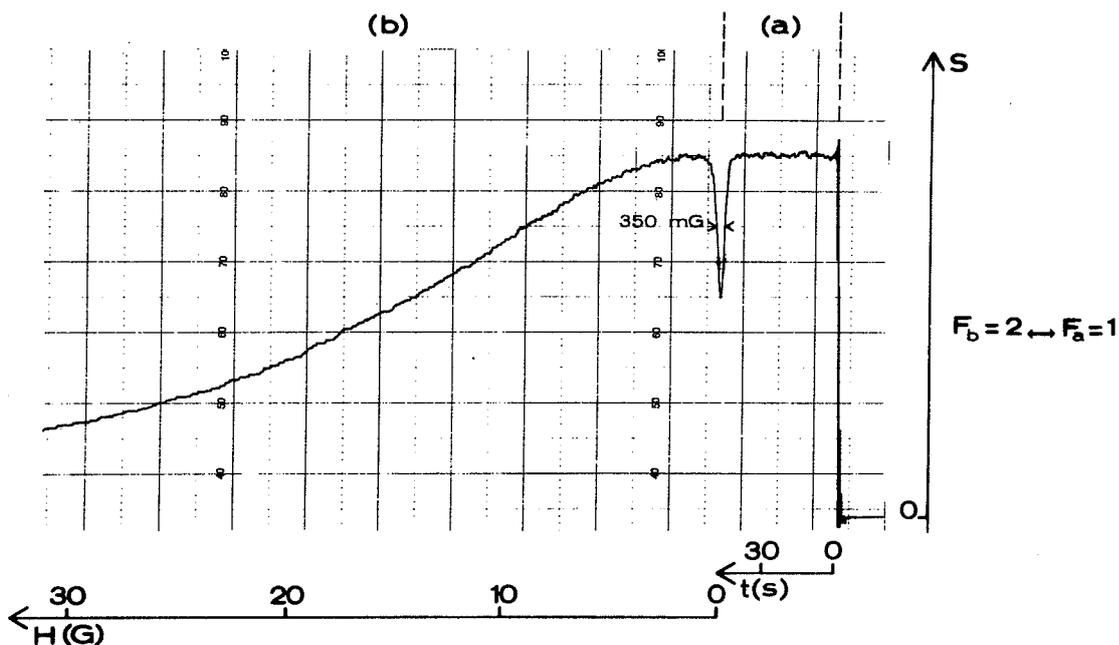


Fig. 37 - Enregistrement du signal de fluorescence, en polarisation σ_y , du jet de sodium (raie D_1) : (a) en fonction du temps, le laser étant stabilisé au sommet de la composante hyperfine $F_b=2 \leftrightarrow F_a=1$; (b) en fonction du champ magnétique. $P=P_0/30$ ($P_0 \approx 0,5$ W/cm²). Durée du balayage magnétique : 4 min. Constante de temps de détection : 0,3 s.

Les Figures 36 et 37 indiquent également que les diverses résonances de croisements de niveaux en champ nul sont observées avec un bon rapport Signal/Bruit. A titre de comparaison, rappelons que dans les expériences effectuées avec un laser Hélium-Néon multimode, il était nécessaire d'effectuer une détection synchrone du signal de fluorescence et de l'intégrer pendant plusieurs heures à l'aide d'un analyseur multicanaux afin d'observer des effets non-linéaires avec un rapport Signal/Bruit comparable [4]. D'autre part, la cellule d'expériences devait être placée à l'intérieur de la cavité du laser pour qu'on puisse atteindre une densité d'énergie suffisante ¹⁾.

1-4 DESCRIPTION ET DISCUSSION DES RESULTATS.

1-4-1 Transition $F_b=2 \longleftrightarrow F_a=1$. Comparaison avec la théorie.

Les enregistrements expérimentaux de l'effet Hanle de la composante $F_b=2 \longleftrightarrow F_a=1$ de la raie D_1 , obtenus pour diverses puissances par unité de surface du faisceau laser, sont reproduits sur la Figure 38. Nous avons tracé sur la Figure 39 les courbes théoriques correspondantes. Celles-ci sont calculées à partir de l'expression (56) pour des valeurs $(\tilde{\Omega}/\gamma)^2$ dans le rapport des coefficients d'atténuation successifs du faisceau de pompage.

La comparaison des deux figures montre que la théorie permet d'interpréter la forme des courbes expérimentales et leur évolution avec l'intensité du rayonnement. Toutefois, l'accord n'est pas parfait. Il y a plusieurs raisons à cela. Le calcul numérique de l'expression (56) pour un jeu de paramètres $\tilde{\Omega}$ et T donné étant assez long (environ

1) Lorsque le laser oscille sur un grand nombre de modes répartis sur une plage de largeur spectrale Δ grande devant γ , le système atomique évolue à une fréquence réduite d'un facteur de l'ordre de Ω/Δ par rapport à la fréquence de Rabi Ω [14]. Il faut donc une puissance lumineuse supérieure à celle que requiert un laser monomode pour induire des phénomènes de même nature.

3 minutes), nous n'avons pas tenté d'optimiser l'accord à l'aide d'un processus automatique. Nous avons donc choisi approximativement les valeurs $\tilde{\Omega}/\gamma = 15$ (pour $P=P_0$) et $T/\tau = 400$. Certains aspects de l'expérience dont nous n'avons pas tenu compte dans la théorie constituent une source de divergence plus importante. La largeur spectrale du laser et la largeur de l'effet Doppler résiduel contribuent à rendre les courbes expérimentales plus larges que les courbes théoriques, en particulier parce qu'elles augmentent le champ magnétique nécessaire pour placer le laser hors-résonance. D'autre part, nous avons utilisé le temps de transit T associé aux atomes ayant la vitesse moyenne \bar{v} dans le jet. En réalité, il faudrait tenir compte de la distribution thermique des vitesses $f(v)$ du jet atomique. L'expression (55) serait alors remplacée par :

$$S' = \int_0^\infty f(v) dv \int_0^{L/v} L(\vec{e}_y, t) dt \quad . \quad (57)$$

Nous n'avons pas effectué cette intégrale supplémentaire qui augmenterait notablement le temps de calcul sur ordinateur.

La Figure 40 montre les contributions relatives au signal d'effet Hanle des 3 termes contenus dans l'expression (56). On voit que la

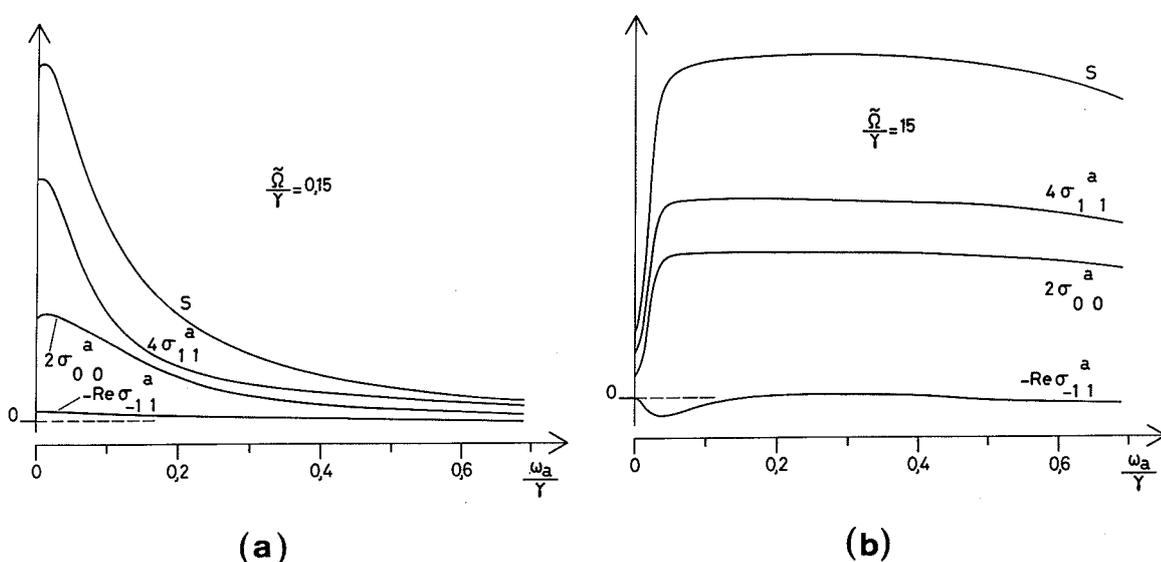


Fig. 40 - Courbes théoriques représentant les diverses contributions au signal d'effet Hanle S pour les valeurs extrêmes de $\tilde{\Omega}/\gamma$ apparaissant dans la Figure 39.

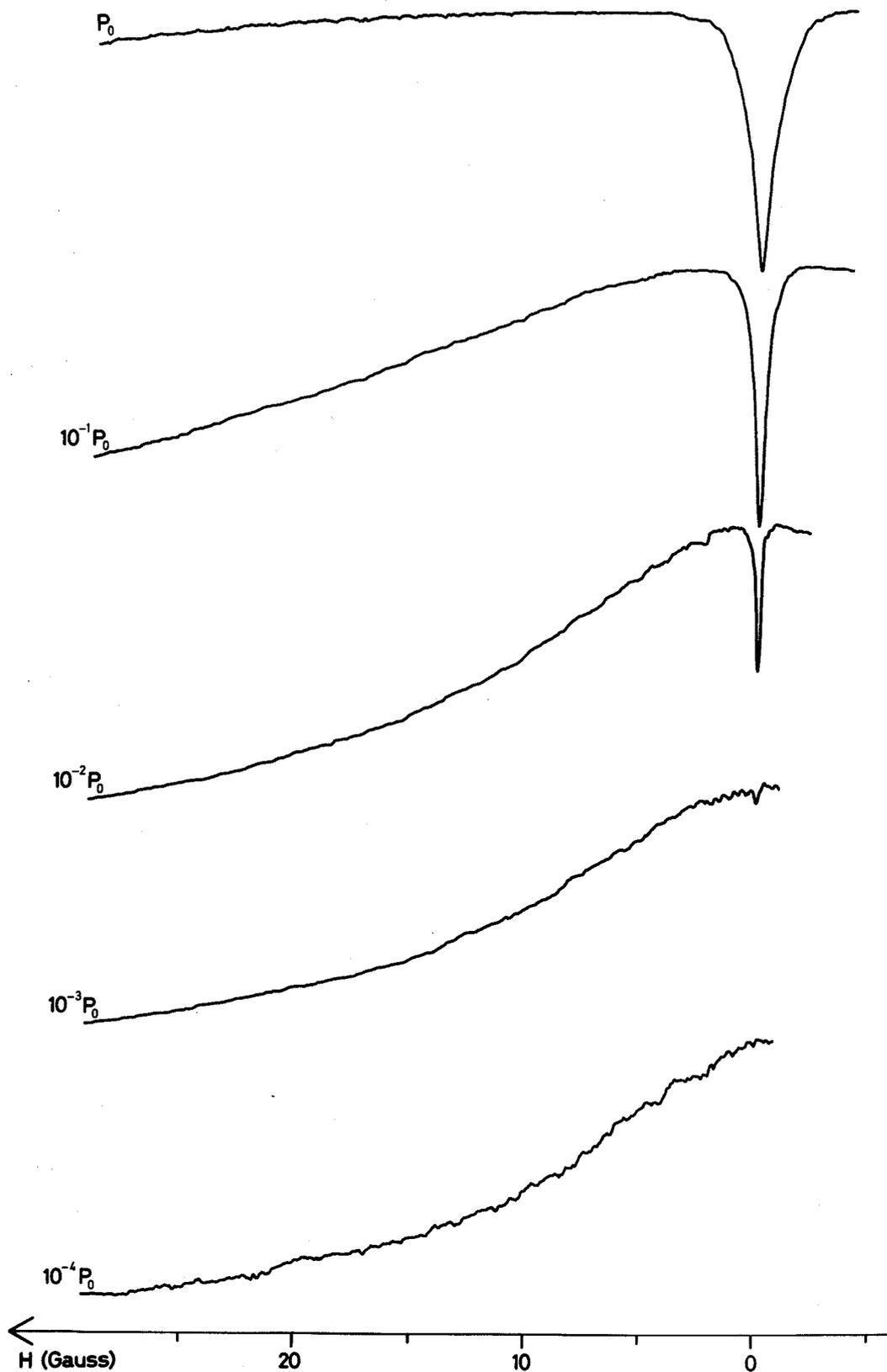


Fig. 38 - Enregistrements expérimentaux de l'effet Hanle de la composante hyperfine $F_b=2 \longleftrightarrow F_a=1$ de la raie D_1 du sodium, pour diverses intensités du faisceau laser ($P_0 \approx 0,5 \text{ W/cm}^2$).

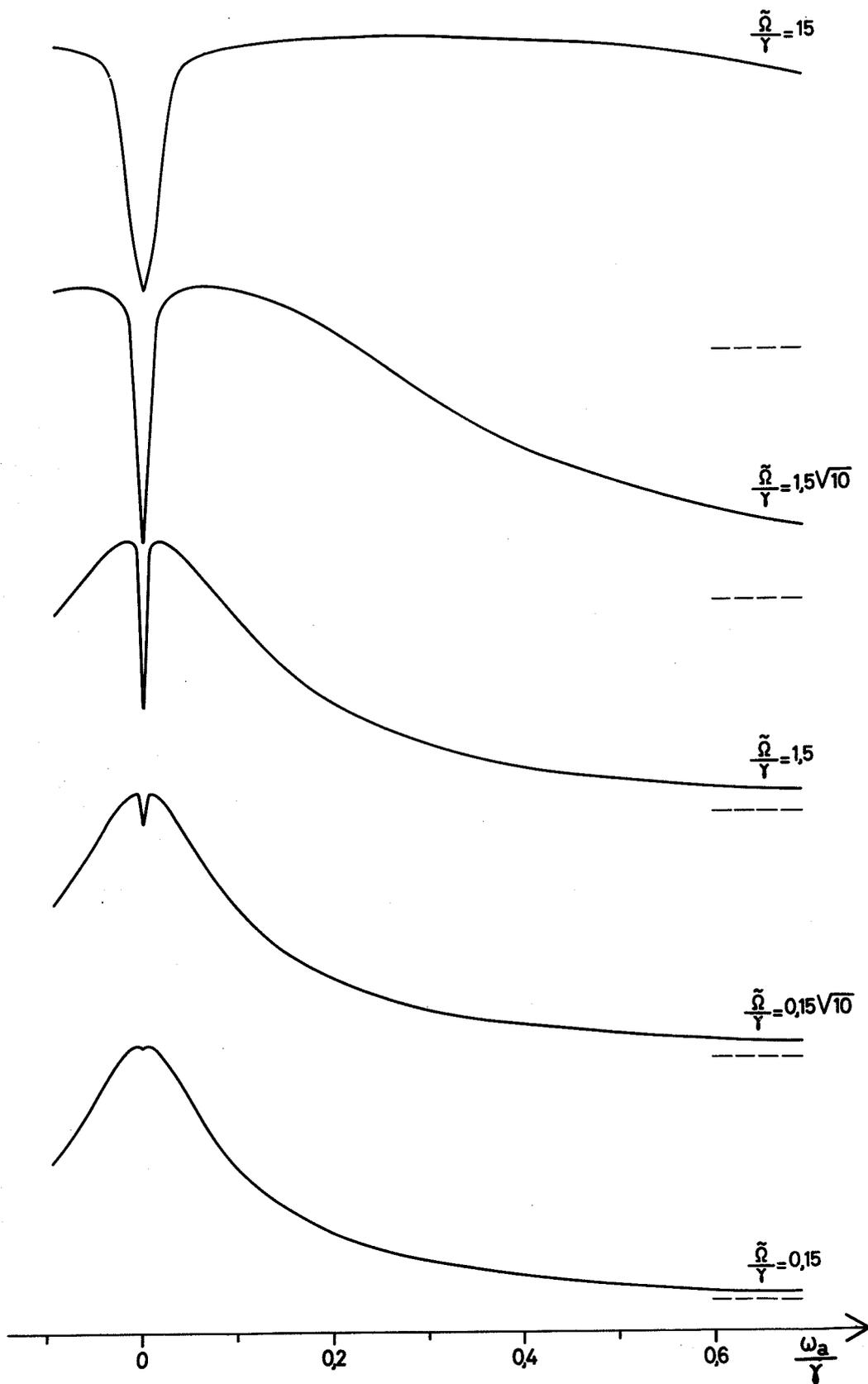


Fig. 39 - Courbes théoriques de l'effet Hanle de la composante hyperfine $F_b=2 \longleftrightarrow F_a=1$ de la raie D_1 du sodium correspondant aux enregistrements de la Figure 38. Le zéro de chaque courbe est indiqué par un trait pointillé.

part de l'alignement est faible devant celle des populations, à faible intensité (Fig. 40-a) comme à forte intensité (Fig. 40-b) du rayonnement. Cela pouvait être prévu (au moins à faible intensité) à l'aide des résultats obtenus dans l'étude de la réponse linéaire pour un système fermé. A partir des expressions (25), (29) et (33), on trouve que les valeurs prises pour $H=0$ par les quantités $-\text{Re } \sigma_{-11}^a(2)$, $2 \sigma_{00}^a(2)$ et $4 \sigma_{11}^a(2)$ sont respectivement proportionnelles à 1, 12, 28.

La résonance large et la résonance étroite sont donc caractéristiques des populations de l'état excité. Aussi, nous savons qu'à faible puissance lumineuse, la résonance large provient des cohérences optiques (balayage Zeeman). Dans l'étude de la réponse linéaire en régime stationnaire (A-4-2-1), nous avons montré que les courbes représentant σ_{00}^a et σ_{11}^a avaient respectivement pour largeur $\gamma/3$ et $\gamma/6$. Les courbes correspondantes de la Figure 40-a confirment ces ordres de grandeur, et la largeur à mi-hauteur de la courbe résultante est nettement inférieure à $\gamma/2$. La largeur de la courbe expérimentale obtenue pour $P = 10^{-4} P_0$ (Fig. 38) est voisine de $\gamma/2,5$. Nous savons également (A-4-2-2) que la résonance étroite résulte du couplage à l'ordre 4 avec l'alignement de l'état fondamental (Fig. 17). C'est cette même résonance qui figurait dans les courbes $\sigma_{11}^a(H)$ que nous avons présentées dans le cas d'un système fermé (Fig. 18, 28). Comme elle est issue d'un effet non-linéaire, elle n'apparaît pratiquement pas pour $P = 10^{-4} P_0$, puis son amplitude croît rapidement avec l'intensité du rayonnement. Par contre, l'importance de la contribution des populations empêche l'observation des résonances quadrupolaire et hexadécapolaire présentes dans les courbes $\text{Re } \sigma_{-11}^a(H)$ (Fig. 22, 26). A forte puissance lumineuse (Figure 40-b), elles ont seulement pour effet d'arrondir le sommet de la résonance étroite.

Cet exemple montre l'importance du schéma de détection utilisé. Avec une source ordinaire, la détection de $L(\vec{e}_y)$ ou de $L(\vec{e}_y) - L(\vec{e}_x)$ aurait donné la même courbe de variation vis-à-vis du champ magnétique, le second schéma permettant seulement l'élimination

d'un fond continu. Avec un laser monomode, nous avons observé essentiellement la variation des populations ¹⁾, alors qu'en utilisant le second schéma nous aurions observé exclusivement la variation de l'alignement.

1-4-2 Transition $F_b=2 \longleftrightarrow F_a=3$.

Nous nous limiterons à la description des résultats obtenus pour l'effet Hanle d'une seule autre transition, qui présente des caractéristiques très différentes. Il s'agit de la composante hyperfine $F_b=2 \longleftrightarrow F_a=3$ de la raie D_2 . Les enregistrements expérimentaux sont reproduits sur la Figure 41. Parmi les deux résonances étroites, la résonance négative est peu marquée. Elle apparaît le mieux sur les enregistrements $P = 10^{-2} P_0$ et $P = 10^{-1} P_0$ (Fig. 41) et surtout sur la Figure 36.

Nous avons noté à maintes reprises que les niveaux $F_b=2$ et $F_a=3$ de cette composante de la raie D_2 constituent en première approximation un système fermé (I-A-4). Pour effectuer le calcul numérique du signal, il serait donc suffisant (au moins pour $\Omega/\gamma < 6$) de déterminer la solution en régime stationnaire du système issu des équations (19) dans ce cas particulier. Nous ne l'avons pas fait jusqu'à présent car, par suite du grand nombre de sous-niveaux Zeeman mis en jeu, ce système comporterait 41 équations (en tenant compte de la symétrie $\omega = \omega_0$).

On peut toutefois expliquer qualitativement les différences avec la transition $F_b=2 \longleftrightarrow F_a=1$ par la simple comparaison des diagrammes des Figures 42 et 4. Le rapport des probabilités des transitions $\mu=0 \longleftrightarrow m=\mp 1$ et $m=\mp 1 \longleftrightarrow \mu=\mp 2$ est inversé, ce qui renforce la cohérence σ_{-11}^a au détriment de la cohérence σ_{-22}^b . D'autre part,

1) Cela est particulièrement vrai pour la transition $F_b=2 \longleftrightarrow F_a=1$, pour laquelle il est bien connu que l'alignement de l'état excité est faible.

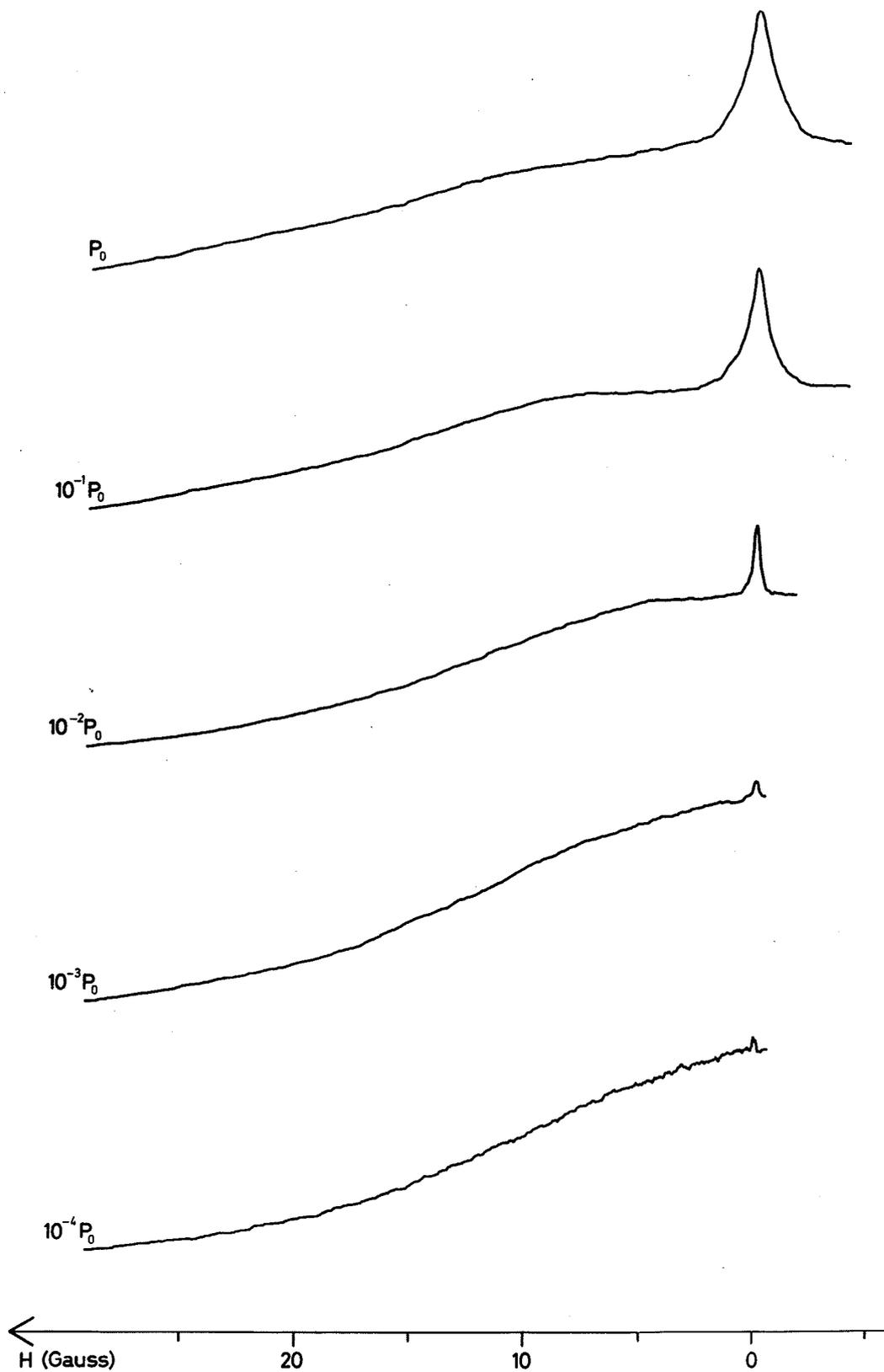


Fig. 41 - Enregistrements expérimentaux de l'effet Hanle de la composante hyperfine $F_b=2 \longleftrightarrow F_a=3$ de la raie D_2 du sodium, pour diverses intensités du rayonnement égales à celles de la Figure 38 ($P_0 \approx 0,5 \text{ W/cm}^2$).

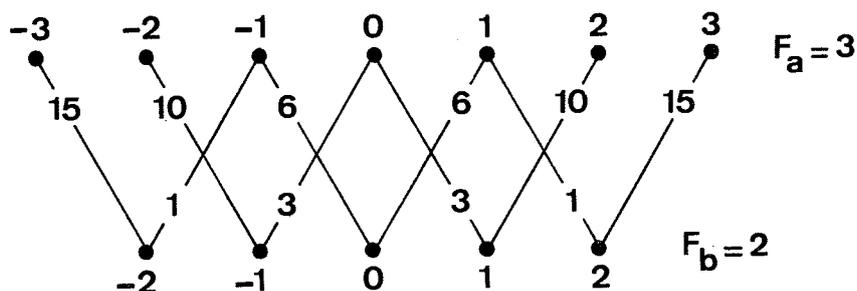


Fig. 42 - Diagramme des transitions Zeeman induites par un rayonnement de polarisation linéaire σ dans un système ($F_b=2$, $F_a=3$).

il existe d'autres cohérences $\Delta m = 2$ dans un niveau $F_a=3$. L'alignement induit dans l'état excité est donc plus important pour la transition $F_b=2 \longleftrightarrow F_a=3$ que pour la transition $F_b=2 \longleftrightarrow F_a=1$. Enfin, les différentes composantes de l'alignement sont affectées dans l'expression du signal de détection de coefficients plus élevés par rapport à celui des populations. En effet, au lieu de (52), on a :

$$L(\vec{e}_y) \propto 3 \sigma_{00}^a + 7 \sigma_{11}^a + 10 \sigma_{22}^a + 15 \sigma_{33}^a - 6 \operatorname{Re} \sigma_{-11}^a - 2 \sqrt{30} \operatorname{Re} \sigma_{02}^a - 2 \sqrt{15} \operatorname{Re} \sigma_{13}^a. \quad (58)$$

Les résonances résultant du couplage des cohérences Zeeman de l'état fondamental avec l'alignement de l'état excité doivent donc, dans le cas de la transition $F_b=2 \longleftrightarrow F_a=3$, être visibles dans le signal global d'effet Hanle¹⁾. La résonance négative serait ainsi issue du moment quadrupolaire de l'état fondamental et la résonance positive du moment hexadécapolaire²⁾.

1) Cette hypothèse est confirmée par l'observation de la même résonance étroite positive dans une expérience antérieure de pompage par un laser à colorant monomode de la même raie du sodium, dans laquelle on ne détectait que l'alignement de l'état excité [9].

2) Il peut paraître anormal qu'un effet d'ordre 6 apparaisse plus nettement qu'un effet d'ordre 4, mais il est possible que ce dernier soit masqué par la contribution des populations ou par des effets d'ordre supérieur. Dans le cas du pompage par un laser multimode de la raie à 6328 \AA du néon, l'effet d'ordre 6 apparaissait avant l'effet d'ordre 4 [4].

2 - DETECTION NON - OPTIQUE.

2-1 PRINCIPE DE L'EXPERIENCE.

Il s'agit d'une expérience de déviation magnétique de type Rabi (II-B). Le champ magnétique H appliqué dans la région d'interaction C est parallèle aux champs et gradients des aimants A et B . La partie excitation (Fig. 1) est identique à celle de l'expérience de détection optique. Mais on relève ici le nombre d'atomes détectés en fonction de H . On utilise le montage "flop-in" et on détecte uniquement les atomes ayant subi dans la région C un transfert $m_J \rightarrow -m_J$ donné.

2-2 SIGNAL DE DETECTION.

Le signal S est proportionnel au nombre d'atomes qui sont entrés à l'instant $t=0$ dans le faisceau laser dans un état de $m_J = 1/2$ et en sont sortis à l'instant $t=T$ dans un état de $m_J = -1/2$ (on pourrait aussi employer le schéma de détection inverse). Soit :

$$S \propto \sum_{\mu \in -\frac{1}{2}} \sigma_{\mu\mu}(T) \quad , \quad (59)$$

avec les conditions initiales :

$$\begin{cases} \sigma_{\mu\mu}(0) = 0 & \text{pour } \mu \in -\frac{1}{2} \\ \sigma_{\mu\mu}(0) = n & \text{pour } \mu \in \frac{1}{2} \end{cases} \quad . \quad (60)$$

Ces conditions initiales décrivent l'un des deux faisceaux atomiques séparés spatialement dans l'aimant A , qui constitue un système hors d'équilibre.

Dans l'exemple auquel nous nous intéresserons de transitions issues du niveau $F_b=2$ du sodium (Fig. II-17-b), le signal sera :

$$S \propto \sigma_{-2-2}^b(T) + \sigma_{-1-1}^c(T) + \sigma_{00}^c(T) + \sigma_{11}^c(T) \quad , \quad (61)$$

$$\text{avec } \begin{cases} \sigma_{-2-2}^b(0) = \sigma_{-1-1}^c(0) = \sigma_{00}^c(0) = \sigma_{11}^c(0) = 0 & , \\ \sigma_{22}^b(0) = \sigma_{11}^b(0) = \sigma_{00}^b(0) = \sigma_{-1-1}^b(0) = \frac{N}{8} & . \end{cases} \quad (62)$$

Comme précédemment, le niveau c représente le deuxième niveau hyperfin de l'état fondamental $F_c=1$.

2-3 DESCRIPTION DE L'EXPERIENCE.

2-3-1 Dispositif expérimental.

Une vue partielle de l'appareillage, prise au cours de l'expérience, est donnée en tête du chapitre (Photo II). Le montage expérimental est représenté schématiquement sur la Figure 43. Le système de production du champ magnétique de balayage et d'annulation des champs parasites, au niveau de la zone d'interaction du jet de sodium et du faisceau laser, est le même que dans l'expérience d'effet Hanle (1-3-1). Ici, le rôle des bobines compensatrices est plus important, à cause du champ de fuite des aimants A et B et de l'aimant du spectromètre de masse. Comme dans l'expérience précédente, le laser est stabilisé au centre de la transition étudiée à l'aide de la fluorescence du jet produite par un faisceau annexe. A l'intérieur de l'appareil de jet atomique, la disposition des fentes et obstacles est ajustée pour la détection sélective des transferts $m_J = 1/2 \rightarrow m_J = -1/2$ (Fig. II-26). Le signal est proportionnel au nombre d'atomes reçus par le détecteur à fil chaud. Il est obtenu par la mesure du courant fourni par le multiplicateur d'électrons placé derrière la fente du spectromètre de masse.

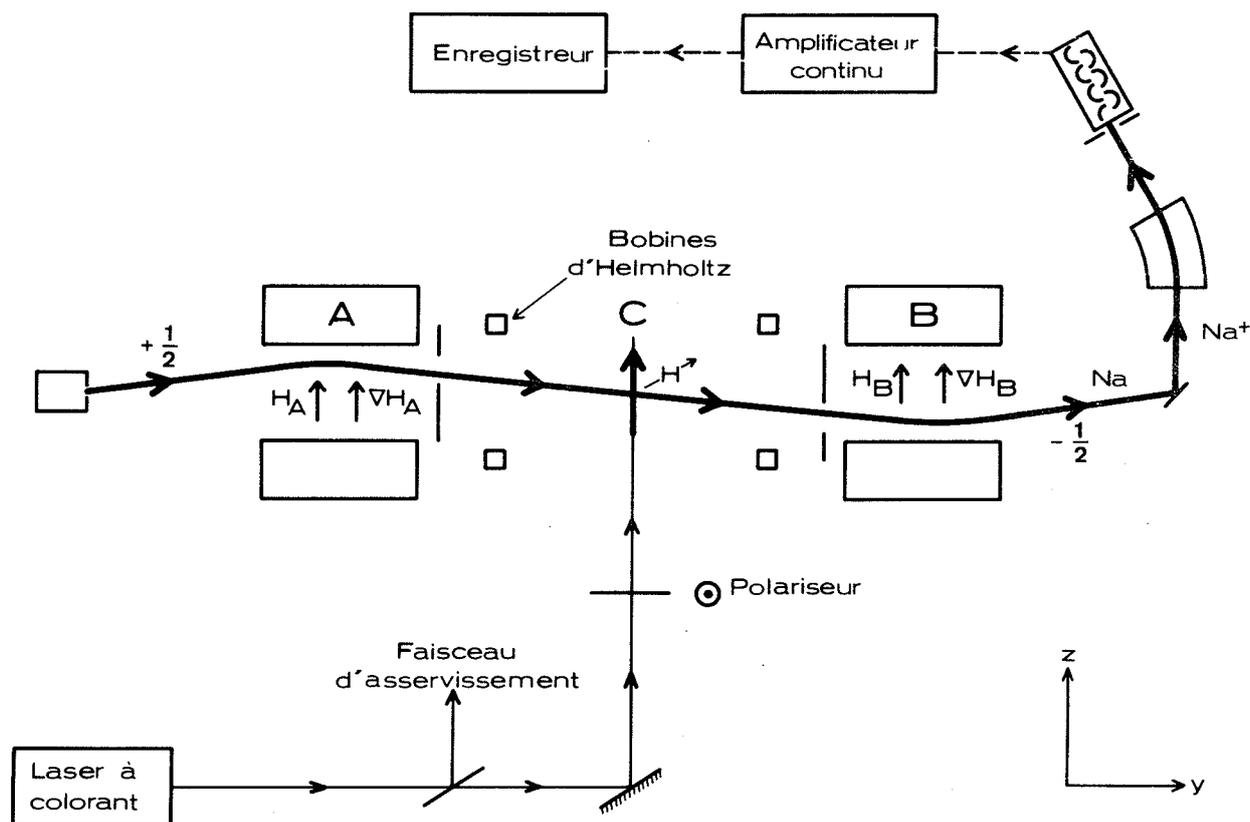


Fig. 43 - Schéma simplifié de l'expérience.

2-3-2 Données expérimentales.

Dans tous les enregistrements que nous présenterons, la puissance fournie par le laser à colorant monomode est de 12 mW. La densité de puissance dans la zone d'interaction est environ $0,4 \text{ W/cm}^2$ (soit une valeur proche de la valeur notée P_0 dans l'expérience de détection optique). La Figure 44 représente un enregistrement du signal non-optique en fonction de plusieurs variables successives : la fréquence du laser, le temps et le champ magnétique. La Figure 44-a montre l'élargissement radiatif des composantes de la raie D_1 issues de $F_b=2$ (Fig.II-30). La Figure 44-b indique la stabilité du signal lorsque le laser est stabilisé au sommet de la composante $F_b=2 \leftrightarrow F_a=2$, la plus intense en détection de type Rabi. La Figure 44-c décrit la modification de ce signal produite par une faible variation de H au voisinage de zéro et donne l'ordre de grandeur des résonances de croisements de niveaux par rapport au signal de résonance optique total.

Il est à noter qu'en champ magnétique nul, l'axe de quantification devient la direction de polarisation du laser, perpendiculaire aux champs H_A et H_B des aimants défecteurs (Fig. 43). Nous avons vérifié que les résonances obtenues n'étaient pas dues à des transitions de Majorana (II-B-3-4) : en plaçant le laser hors-résonance, nous n'avons observé aucune variation du signal lors d'un balayage du champ magnétique.

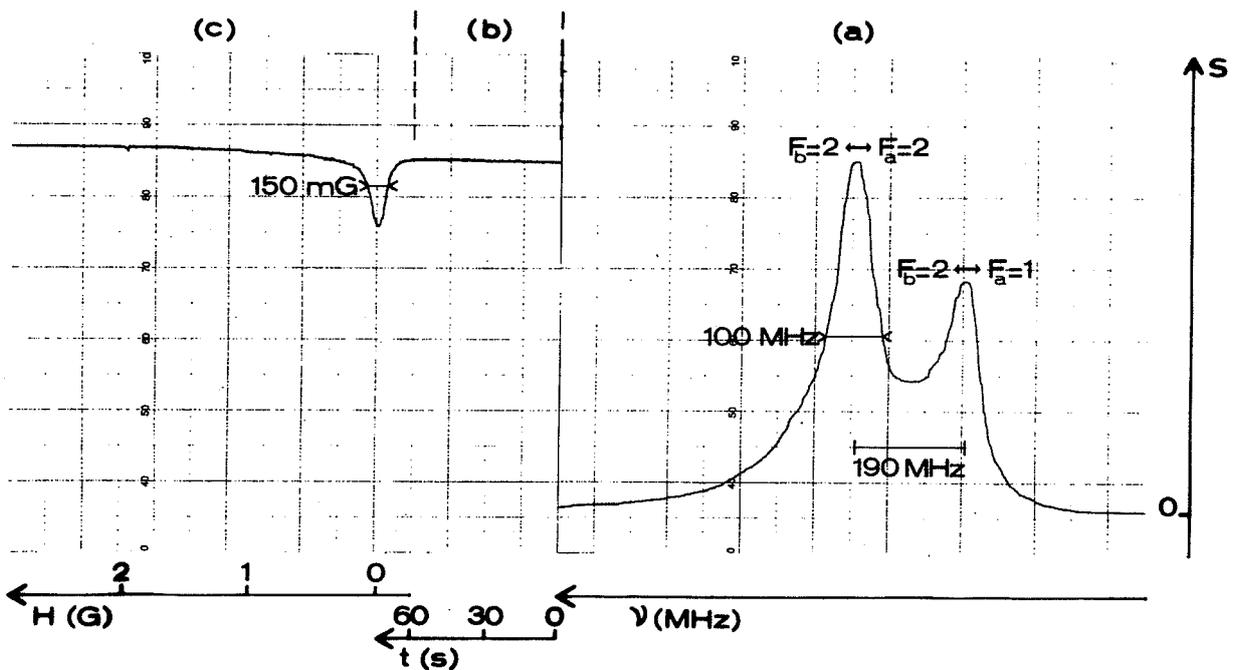


Fig. 44 - Signal proportionnel au nombre d'atomes de sodium détectés :
 (a) en fonction de la fréquence du laser ;
 (b) en fonction du temps, le laser étant stabilisé au sommet de la composante hyperfine $F_b=2 \leftrightarrow F_a=2$ de la raie D_1 ;
 (c) en fonction du champ magnétique.
 Densité de puissance du rayonnement : $P \simeq 0,4 \text{ W/cm}^2$.
 Constante de temps de la détection : $0,3 \text{ s}$.

2-4 DESCRIPTION ET DISCUSSION DES RESULTATS.2-4-1 Transition $F_b=2 \longleftrightarrow F_a=1$.

La Figure 45 montre le signal observé en fonction du champ magnétique. La sensibilité de la détection est ici multipliée par 3,3 par rapport à l'enregistrement de la Figure 44. La région voisine du champ nul, qui comporte 2 résonances, est agrandie sur la Fig. 46-a. La largeur du pic positif ($\Delta H = 75$ mG) correspond à $\Delta\omega_b = \Gamma/2$ en prenant $\Gamma = \gamma/100$. Cette résonance ne peut donc provenir que du moment hexadécapolaire induit par le laser dans le niveau fondamental $F_b=2$ (aucune autre cohérence n'est susceptible de donner lieu à une résonance aussi étroite). La largeur de la résonance centrale négative ($\Delta H = 1\ 200$ mG) correspond à $\Delta\omega_b = 8,4 \Gamma$ (ou à $\Delta\omega_a = \gamma/36$). Cette résonance ne peut donc être attribuée qu'au moment quadrupolaire de l'état fondamental (les largeurs associées aux cohérences optiques ou à l'alignement de l'état excité sont des fractions plus grandes de γ). Le fait que le rapport des largeurs des deux résonances ne soit pas égal au rapport 1/2 des fréquences de Larmor des cohérences $\Delta\mu=4$ et $\Delta\mu=2$ n'est pas étonnant. Nous avons montré dans l'étude antérieure (A-4-2) qu'à un ordre de perturbation donné, les dénominateurs résonnants décrivant l'évolution propre de ces cohérences sont multipliés par d'autres dénominateurs

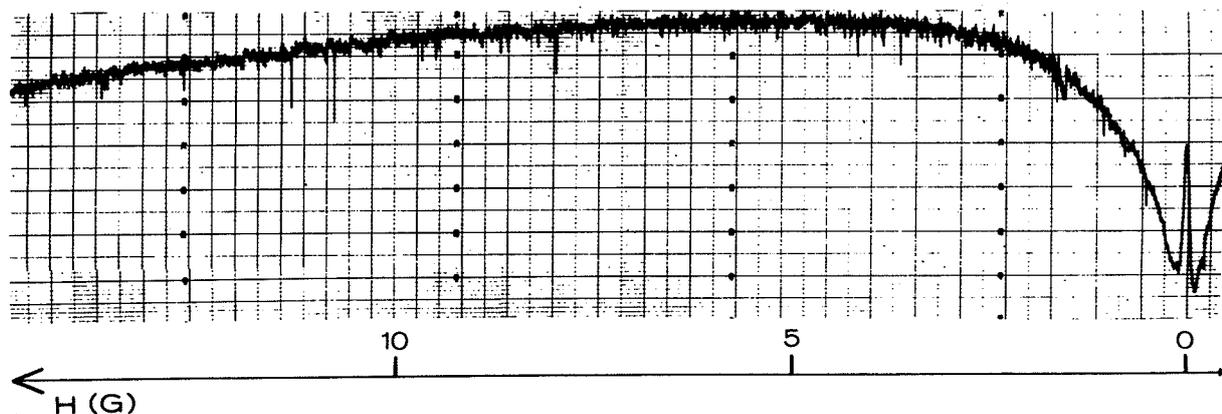


Fig. 45 : Signal non-optique de croisement de niveaux observé pour la transition $F_b=2 \longleftrightarrow F_a=1$. Densité de puissance du rayonnement : $P \approx 0,4$ W/cm². Durée de l'enregistrement : 14 min. Constante de temps de la détection : 1 s.

résonnants (ces derniers étant associés aux cohérences optiques et Zeeman auxquelles elles sont couplées dans les processus qui conduisent à leur création puis à leur observation). La largeur globale des résonances n'est donc pas exactement $\Gamma/2$ ou Γ . De plus, la résonance hexadéca-polaire apparaît à un ordre de perturbation plus élevé que la résonance quadrupolaire : cette dernière est à ce moment élargie par les processus d'ordre supérieur à celui auquel elle est apparue.

Nous ne ferons pas, en ce qui concerne cette expérience, de comparaison entre les enregistrements expérimentaux et des courbes théoriques. En effet, pour alléger les calculs numériques, nous n'avons étudié que des systèmes "symétriques" (polarisation σ linéaire, condition de résonance $\omega = \omega_0$). Ici, la symétrie est rompue par les conditions initiales (62). Il est néanmoins possible de comprendre les mécanismes conduisant aux résonances observées. Le signal de résonance (61) se décompose en une partie "cohérente" représentée par la population du niveau $\mu = -2$ de l'état b et une partie "incohérente" constituée par la somme des populations de l'état c .

Les populations $\sigma_{\mu\mu}^c$ ne sont couplées qu'aux populations σ_{mm}^a , par émission spontanée. Leur dépendance vis-à-vis du champ magnétique reflète donc celle des populations de l'état excité. La résonance quadrupolaire issue du couplage à l'ordre 4 de l'alignement de l'état b avec les populations de l'état a se trouve ainsi transférée aux populations de l'état c . Cette explication est confirmée par le fait qu'avec approximativement la même intensité de rayonnement, la largeur de la résonance observée en détection optique (Fig. 38, $P = P_0$) est égale à la largeur $\Delta H = 1\ 200$ mG de la résonance observée en détection non-optique (Fig. 45).

De son côté, la population σ_{-2-2}^b est couplée à la population σ_{-1-1}^a et à la cohérence σ_{-20}^b par le rayonnement laser. Nous avons montré dans notre étude perturbative (A-4-2-2) qu'il se produit par l'intermédiaire de cette cohérence un couplage à l'ordre 8 avec le

moment hexadécapolaire de l'état fondamental. Nous avons montré par la suite (A-5-2-2) que la résonance correspondante apparaissait sur la grandeur $\sigma_{-2-2}^b(\mathbb{T})$ (ou sur $\sigma_{22}^b(\mathbb{T})$ dans un système symétrique ; voir Fig. 33).

L'observation du moment hexadécapolaire de l'état fondamental à l'aide d'une détection de type Rabi est donc due à un processus d'ordre 8, comportant 4 interactions successives entre l'atome et le rayonnement. Dans une expérience de diffusion vers l'avant directement sensible aux cohérences du niveau fondamental [5], l'observation du moment hexadécapolaire résultait d'un processus d'ordre 4. Dans une expérience de fluorescence sensible aux cohérences du niveau supérieur de la transition [4] , elle résultait d'un processus d'ordre 6.

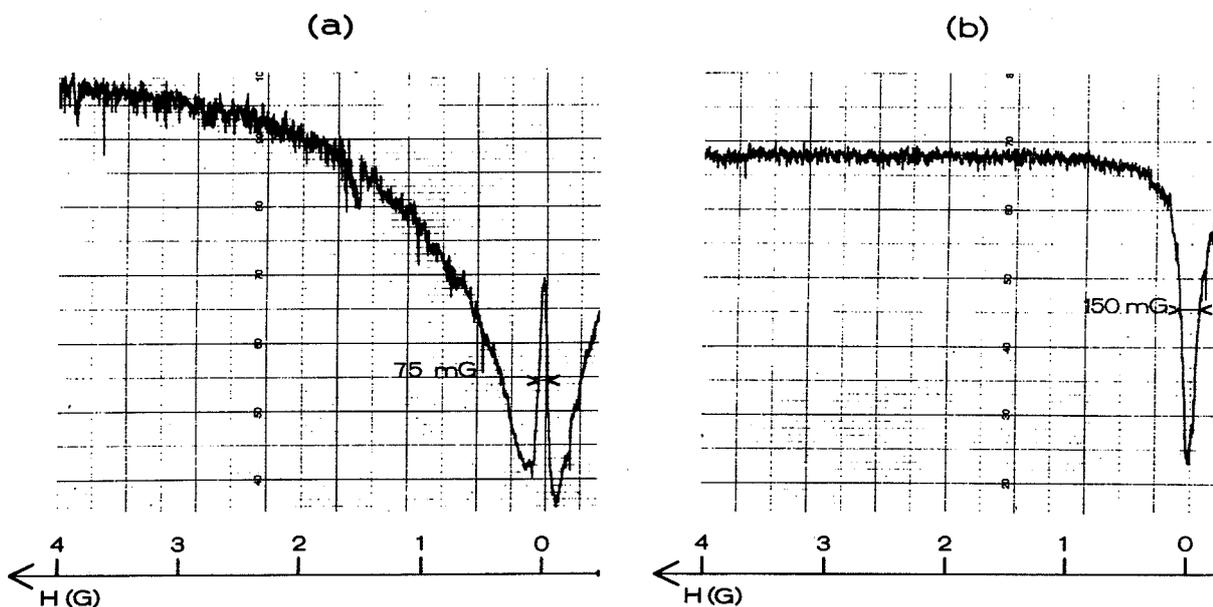


Fig. 46 - Signal non-optique de croisement de niveaux observé au voisinage du champ nul pour les transitions $F_b=2 \leftrightarrow F_a=1$ (a) et $F_b=2 \leftrightarrow F_a=2$ (b), pour la même intensité du faisceau de pompage ($P \approx 0,4 \text{ W/cm}^2$).

2-4-2 Transition $F_b=2 \longleftrightarrow F_a=2$.

La Figure 46-b, relative à la transition $F_b=2 \longleftrightarrow F_a=2$, doit être comparée à la Figure 46-a, relative à la transition $F_b=2 \longleftrightarrow F_a=1$: les enregistrements ont été effectués dans les mêmes conditions et sont représentés à la même échelle. Sur la Figure 46-b, la résonance positive a disparu et la résonance négative est plus étroite. Ces résultats peuvent s'expliquer en partie par la comparaison des diagrammes des Figures 47 et 4 . On remarque en particulier que la probabilité de la transition Zeeman $m=\mp 1 \leftrightarrow \mu=\pm 2$ est 3 fois plus faible pour la transition $F_b=2 \longleftrightarrow F_a=2$ que pour la transition $F_b=2 \longleftrightarrow F_a=1$ (les chiffres indiqués sont directement comparables car la probabilité de transition totale est la même dans les deux cas). Or, cette transition Zeeman intervient à la fois dans les processus permettant la création et l'observation du moment hexadécapolaire. Il est donc logique que, pour une intensité lumineuse donnée, la résonance hexadécapolaire apparaisse pour la transition $F_b=2 \longleftrightarrow F_a=1$ et non pour la transition $F_b=2 \longleftrightarrow F_a=2$.

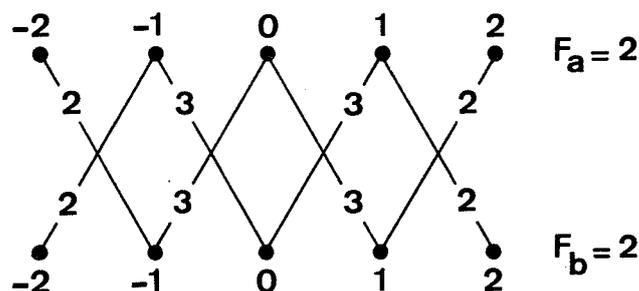


Fig. 47 - Diagramme des transitions Zeeman induites par un rayonnement de polarisation linéaire σ dans un système $(F_b=2, F_a=2)$.



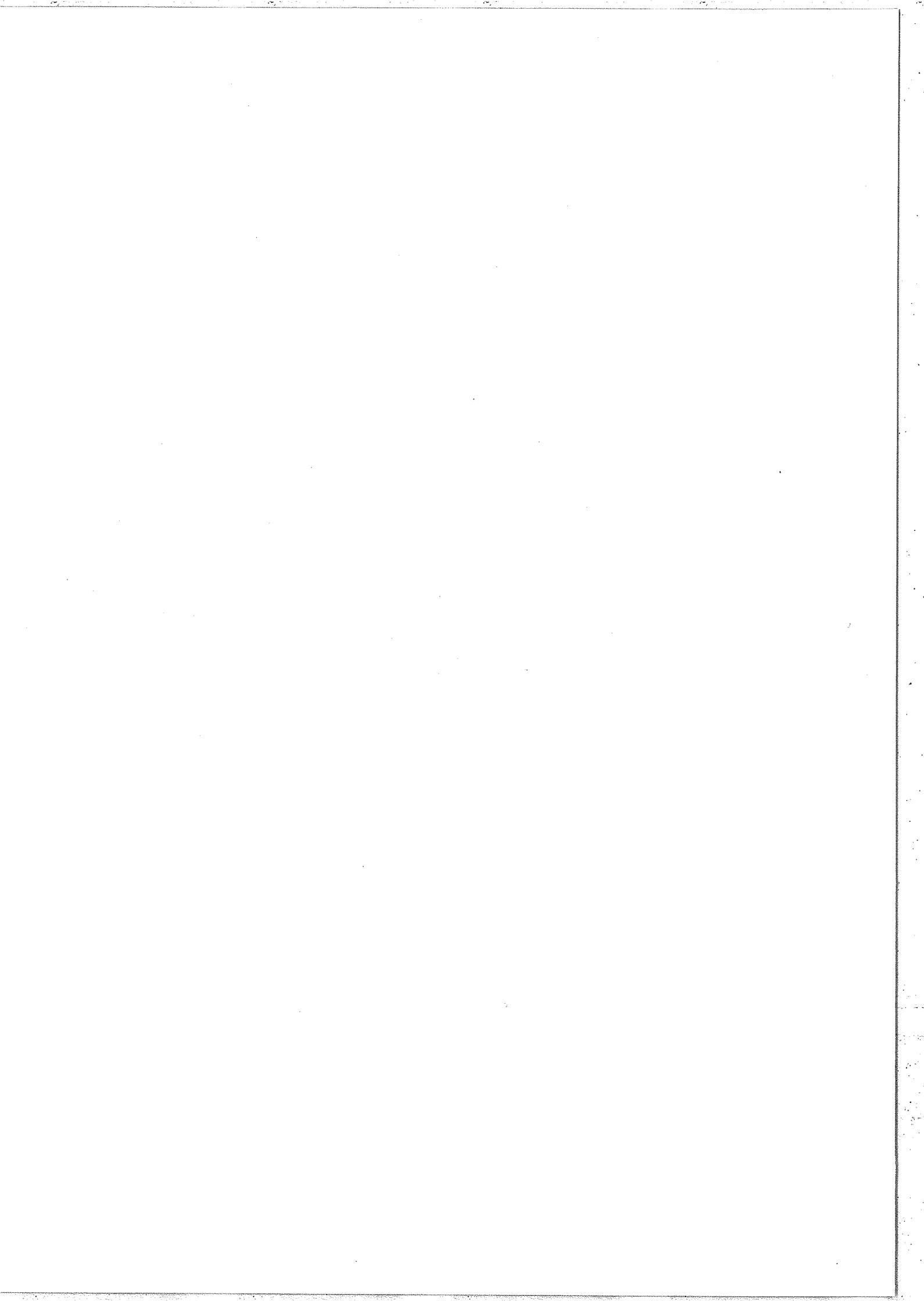
BIBLIOGRAPHIE DU CHAPITRE III

- [1] W. Hanle, Z. Phys. 30, 93 (1924).
- [2] J. C. Lehmann et C. Cohen-Tannoudji, C. R. Acad. Sc. 258, 4463 (1964).
- [3] M. Ducloy, Opt. Commun. 3, 205 (1971).
- [4] M. Ducloy, M. P. Gorza et B. Decomps, Opt. Commun. 8, 21 (1973).
- [5] W. Gawlik, J. Kowalski, R. Neumann et F. Träger, Opt. Commun. 12, 400 (1974).
- [6] R. L. Fork, L. E. Hargrove et M. A. Pollack, Phys. Rev. Lett. 12, 705 (1964).
- [7] M. Gorlicki et M. Dumont, Opt. Commun. 11, 166 (1974).
- [8] W. Rasmussen, R. Schieder et H. Walther, Opt. Commun. 12, 315 (1974).
- [9] H. Brand, W. Lange, J. Luther, B. Nottbeck et H. W. Schröder, Opt. Commun. 13, 286 (1975).
- [10] R. Schieder et H. Walther, Z. Phys. 270, 55 (1974).
- [11] N. Bloembergen et Y. R. Shen, Phys. Rev. 133, 137 (1964).
- [12] W. E. Lamb Jr., Phys. Rev. 134, A 1429 (1964).
- [13] S. Haroche et F. Hartmann, Phys. Rev. A6, 1280 (1972).
- [14] C. Cohen-Tannoudji, in "Atomic Physics 4", édité par G. zu Puttlitz, E. W. Weber et A. Winnacker, Plenum Press, New York (1975).
- [15] J. P. Barrat et C. Cohen-Tannoudji, J. Phys. Rad. 22, 329, 443 (1961); C. Cohen-Tannoudji, Ann. Physique 7, 423, 469 (1962).
- [16] M. Ducloy, Phys. Rev. A8, 1844 (1973) ; A9, 1319 (1974).
- [17] M. Dumont, J. Physique 33, 971 (1972).
- [18] P. Avan et C. Cohen-Tannoudji, J. Physique Lett. 36, L 85 (1975).

- [19] J. Brosseau, in "Quantum Optics and Electronics", Ecole d'Eté de Les Houches 1964, édité par C. Dewitt, A. Blandin et C. Cohen-Tannoudji, Gordon & Breach, New York (1965).
- [20] C. Cohen-Tannoudji et A. Kastler, in "Progress in Optics", Vol. 5, North Holland, Amsterdam (1966).
- [21] W. Happer, Rev. Mod. Physics 44, 169 (1972).
- [22] B. Decamps, M. Dumont et M. Ducloy, in "Laser Spectroscopy of Atoms and Molecules", édité par H. Walther, Topics in Applied Physics, Vol. 2, Springer-Verlag, Berlin (1976).
- [23] A. Omont, J. Physique 26, 26 (1965).
- [24] M. I. d'Yakonov et V. I. Perel, Sov. Phys. JETP 20, 997 (1965).
- [25] H. G. Dehmelt, Phys. Rev. 105, 1924 (1957).
- [26] A. Corney, B. P. Kibble et G. W. Series, Proc. Roy. Soc. 293A, 70 (1966).
- [27] C. Cohen-Tannoudji, in "Frontiers in Laser Spectroscopy", Ecole d'Eté de Les Houches 1975, édité par R. Balian, S. Haroche et S. Liberman, North Holland, Amsterdam (1976).
- [28] M. Tsukakoshi et K. Shimoda, J. Phys. Soc. Jap. 26, 758 (1969).

Chapitre IV

EFFET STARK DYNAMIQUE

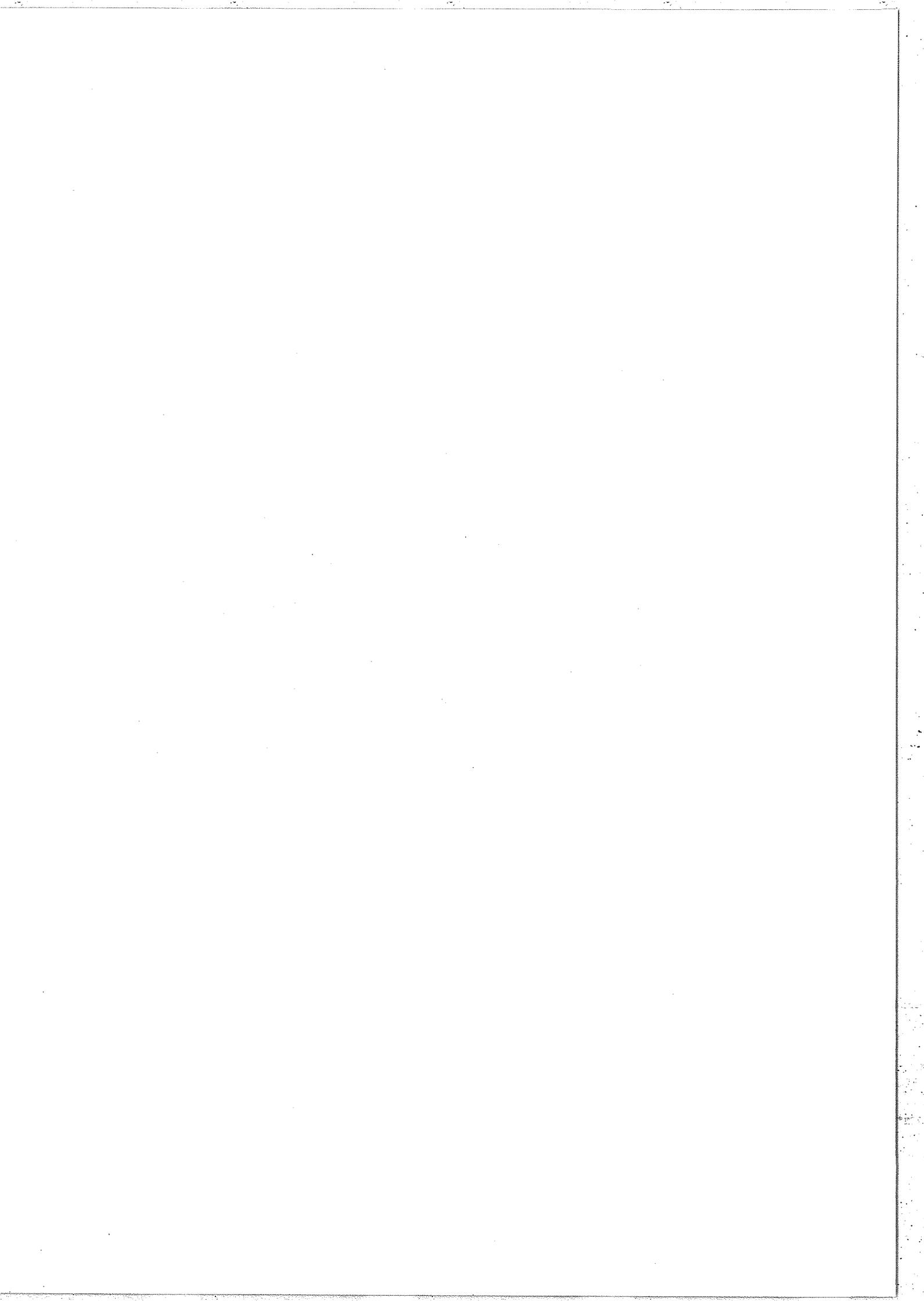


A - RAYONNEMENT DE FAIBLE INTENSITE :
LE PHENOMENE DE "LIGHT-SHIFT".

Titre de l'article : Mesure précise des déplacements de la fréquence de la transition hyperfine 0-0 du césium induits par un laser à GaAs monomode.

Résumé : Nous avons étudié le "light-shift" de la transition hyperfine de l'état fondamental dans une vapeur de césium¹⁾ illuminée par un laser à GaAs monomode accordable. Pour diverses intensités faibles du faisceau lumineux, nous avons mesuré la fréquence de la transition micro-onde $F=3, m_F=0 \longleftrightarrow F=4, m_F=0$ en fonction de la fréquence du laser, déplacée au voisinage de l'une des composantes hyperfines de la raie D_2 . La variation observée du "light-shift" avec la fréquence du laser se trouve en excellent accord avec la courbe de dispersion prévue par la théorie. Nous avons également vérifié quantitativement la proportionnalité du "light-shift" à l'intensité du faisceau lumineux.

1) Contrairement aux autres expériences décrites dans le mémoire, cette expérience n'a pas été effectuée sur un jet atomique. Nous la présentons quand même ici car l'emploi d'une vapeur ne complique pratiquement pas le phénomène étudié : d'une part, le rayonnement sonde se trouve dans le domaine micro-onde, où l'effet Doppler est négligeable ; d'autre part, le "light-shift" induit par le rayonnement optique s'interprète simplement comme la somme des "light-shifts" associés aux différentes classes de vitesses transversales.



LETTER TO THE EDITOR

Precision measurements of light shifts induced by a narrow-band GaAs laser in the 0-0 ^{133}Cs hyperfine transition

M Arditi† and J-L Picqué‡

† Institut d'Electronique Fondamentale, Laboratoire Associé au CNRS, Université Paris-Sud, Bâtiment 220, 91405 Orsay, France

‡ Laboratoire Aimé Cotton, CNRS II, Bâtiment 505, 91405 Orsay, France

Received 7 July 1975

Abstract. Light shifts of the ground state HFS transition in a ^{133}Cs vapour, produced by a cw narrow-band tunable GaAs laser matched to the D_2 resonance line, have been investigated. The 0-0 transition microwave frequency was accurately measured as a function of the laser frequency. For usual optical-pumping light intensities, excellent agreement is found with theory. At higher intensities, distortions appeared in the resonance curves. A new frequency-stabilization method of lasers is suggested.

Atomic energy levels are shifted and broadened by irradiation with quasi-resonant light. Light shifts in ground-state transition frequencies have been previously studied both theoretically (Barrat and Cohen-Tannoudji 1961), and experimentally with the use of spectral lamps (Arditi and Carver 1961, Cohen-Tannoudji 1962, Davidovits and Novick 1966). We have investigated the shifts produced on the 0-0 HFS transition in a ^{133}Cs vapour by radiation from a recently developed cw GaAs laser (Picqué *et al* 1975). The use of a narrow-band tunable laser has enabled us to obtain the first check of the theory in the case of coherent monochromatic radiation. In particular, it has made possible a quantitative comparison between theory and experiment for the light-shift dependence on the radiation frequency. With increasing laser beam intensities, we observed a new phenomenon in the appearance of distortions in the shape of the microwave resonance lines.

Level shifts produced by lasers have already been observed, in purely optical experiments (Bonch-Bruevich *et al* 1969, Liao and Bjorkholm 1975). In these, the frequency of the powerful perturbing laser radiation lay out of the Doppler absorption profile of the atoms. We report here complementary and accurate data concerning the vicinity of optical resonance.

In addition, our results suggest a specific application of laser-induced shifts to laser-frequency stabilization with respect to a microwave reference.

Barrat and Cohen-Tannoudji (1961) showed in the theory of the optical pumping cycle that ground-state transition frequencies can be shifted due to processes involving real or virtual absorption of light. We shall be only concerned with the latter process, which is simply the Stark effect occurring in the oscillating electric field of the light. We consider an atomic model including an excited state a (lifetime Γ^{-1}) and a ground state with two levels b and b' ($E_a - E_b = \hbar\Omega_0$ and $E_b - E_{b'} = \hbar\omega_0$). We suppose the atoms at rest, irradiated by a quasi-resonant monochromatic radiation with frequency Ω . We

L332 *Letter to the Editor*

assume that only the a and b levels are coupled by the radiation, through an electric-dipole matrix element $\hbar V$. By solving the Schrödinger equation of this system in a semi-classical theory (Happer and Mathur 1967), expressions having the same form as that obtained by Barrat and Cohen-Tannoudji (1961) are derived in the case of a monochromatic coherent radiation weak enough so that $|V| \ll \Gamma$:

$$\Delta\omega = V^2(\Omega - \Omega_0)[(\Omega - \Omega_0)^2 + (\frac{1}{2}\Gamma)^2]^{-1}, \quad (1)$$

$$\gamma = V^2\Gamma[(\Omega - \Omega_0)^2 + (\frac{1}{2}\Gamma)^2]^{-1}, \quad (2)$$

for respectively the shift and the width of the transition between b and b' . For higher intensities and the radiation out of resonance ($(\Omega - \Omega_0)^2 \gg V^2 + \frac{1}{4}\Gamma^2$), a broader and weaker resonance (Bonch-Bruevich *et al* 1969), with a shift $\Delta\omega' = \Omega_0 - \Omega - \Delta\omega$ and a width $\gamma' \simeq \Gamma$, is expected to progressively appear in the ground state†.

The experiments were carried out on a resonance cell containing Cs vapour and a buffer gas. The cell was irradiated with a cw GaAs laser (Picqué *et al* 1975) tuned to the 8521 Å, D_2 resonance line. The laser served both to provide efficient hyperfine pumping (Picqué 1974) and produce the light shift. The radiation power available in single-mode operation was of the order of 1 mW in a beam of 0.1 cm² section; the lifetime of the excited state being $\Gamma^{-1} \simeq 30$ ns, the experimental conditions corresponded to $|V| \lesssim \Gamma$. Due to the velocity distribution in the vapour (Doppler width $\Delta \sim 400$ MHz), the hyperfine structure of the $P_{3/2}$ excited state (splittings approximately 200 MHz) was not resolved. The laser frequency was set at different values around the frequency of one or the other of the two hyperfine components arising from the level $F = 3$ or $F = 4$ of the ground state; for each laser frequency, the shift of this level was probed by measuring the frequency ($\omega \simeq 9192.63 \dots$ MHz) of the transition $F = 3, m_F = 0 \leftrightarrow F = 4, m_F = 0$.

The laser single-mode frequency was locked to a transmission resonance of an external cavity, resulting in a stability of a few megahertz (Picqué and Roizen 1975). The frequency displacement was achieved by varying the length of the reference interferometer and measured by means of a second interferometer.

The gas cell was placed in a DC magnetic field of 1 G parallel to the laser beam, to remove the degeneracy of the HFS transition frequencies. The cell was irradiated with microwave power from a horn fed by a klystron. The klystron was phase-locked to a microwave signal produced by mixing a 9180 MHz signal generated by harmonic multiplication from a 5 MHz crystal oscillator and a 12.63 \dots MHz signal from a stable and tunable crystal oscillator. The 5 MHz oscillator frequency was synchronized with a radio-signal at 2.5 MHz generated by station FFH, which is monitored by an atomic frequency standard. By measuring the 12.63 \dots MHz frequency within 0.1 Hz, an accuracy of a few parts in 10^{11} could be obtained for the frequency of the microwaves. The 0-0 transition was detected, with the use of a synchronous detection, by monitoring the fluorescent light from the cell.

Figure 1 shows experimental data of the 0-0 frequency shift $\Delta\omega$ obtained by varying the laser frequency Ω step by step across the absorption profile of the $F = 4$ component. In that case, the Cs cell contained 6 Torr neon as a buffer gas and was kept at room temperature (20 °C). The experimental points determine a S-shaped curve. By using calibrated optical attenuators, we obtained other curves that well verified the light-shift proportionality to the light intensity and crossed at a zero-shift point ($\omega = \bar{\omega}_0, \Omega = \bar{\Omega}_0$)

† In the limit $|V| \gg \Gamma$ a splitting of the ground-state resonance in two symmetrical components should occur even at exact optical resonance $\Omega = \Omega_0$. This is the analogue of the Autler-Townes effect observed in strong RF fields (Autler and Townes 1955).

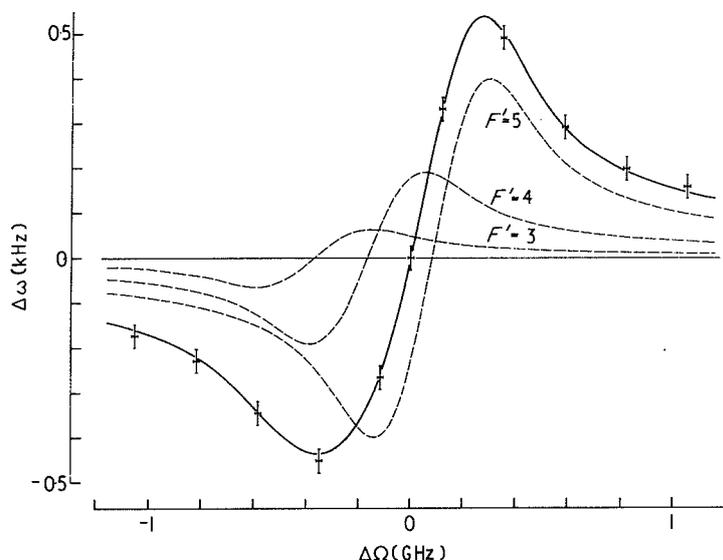


Figure 1. Experimental data and theoretical curves for the light shift $\Delta\omega = \omega - \bar{\omega}_0$ of the 0-0 transition plotted against laser detuning $\Delta\Omega = \Omega - \bar{\Omega}_0$. Broken curves: contribution of hyperfine transitions ${}^2S_{1/2}, (F = 4) \leftrightarrow {}^2P_{3/2}, (F')$.

to within the experimental uncertainties (Arditi and Picqué 1975, figure 1). The resonance linewidth varied between 1 kHz and 2 kHz (for $\Omega = \bar{\Omega}_0$).

The theoretical expression for the observed light shift can be simply derived by adding shifts of the type (1) for a collection of atomic systems with different optical resonance frequencies Ω_0 . These frequencies correspond to the unresolved hyperfine transitions ${}^2S_{1/2}, (F = 4) \leftrightarrow {}^2P_{3/2}, (F' = 3, 4, 5)$ ($\Omega_0 = \Omega_0(F')$) weighted according to the transition probabilities, and for each of these transitions, to the various axial velocities in the vapour ($\Omega_0 = \Omega_0(F') + \Omega v/c$) weighted by a Maxwellian velocity distribution $f(v)$. The result corresponds to the scalar 'HFS light shift' calculated by Mathur *et al* (1968)†:

$$\Delta\omega = V^2 \sum_{F'} 2(2F' + 1) W^2 \left(\frac{3}{2} \frac{7}{2} 1 4; F' \frac{1}{2} \right) \int \frac{(\Omega - \Omega_0 - \Omega v/c) f(v) dv}{(\Omega - \Omega_0 - \Omega v/c)^2 + (\frac{1}{2}\Gamma)^2}. \quad (3)$$

The discrete summation explains the asymmetry of the resultant curve; the integral can be expressed in terms of the tabulated plasma-dispersion function (Fried and Conte 1961). The theoretical curve, plotted as a full curve in figure 1, is seen to be in good agreement with the experimental points‡. The symmetrical broken curves represent the contribution of each hyperfine component to the $F = 4$ level shift. By comparing the theory with the experiment in that example, we deduce a laser beam intensity of $25 \mu\text{W cm}^{-2}$. Conversely, an absolute measurement of that intensity could give the oscillator strength of the transition.

† In our experiment, the 'Zeeman light shift' does not play any role (use of the 0-0 transition) and the 'tensor light shift' is very weak (use of a linear polarization perpendicular to the magnetic field). The contribution of the shift of the $F = 3$ level to the one of the 0-0 frequency is also very small ($\omega_0 \gg \Delta$).

‡ In the case of the buffer gas N_2 (5 Torr), we had to add a collisional term γ_c to $\frac{1}{2}\Gamma$ in the denominator of (3), and to take $\gamma_c \approx 100\Gamma$, to obtain comparable agreement with experiment. This is directly related with the large quenching of the Cs resonance radiation by nitrogen molecules (McGillis and Krause 1967).

L334 *Letter to the Editor*

The previous discussion concerned typical results obtained with light intensities of the order of those used in conventional optical-pumping experiments ($|V| < \Gamma$). With increasing laser beam intensities ($|V| \sim \Gamma$), we observed an asymmetry and a broadening of the microwave resonance curves. This phenomenon occurred in an approximately symmetrical way for opposite laser detunings $\Delta\Omega = \Omega - \bar{\Omega}_0$ and increased with increasing detunings. Some resonance signals are reproduced in figure 2 in the derivative form in which they were obtained. The main effect is an overall displacement, representing the addition of a linear quantity to the resonance signal. This may be interpreted as the superposition of a broad resonance centred on the opposite side of the microwave frequency axis, corresponding well to the weak extra component already mentioned (at a given point $\Delta\omega$ of the main component, the atoms for which $\Delta\omega'(v, F') \simeq \Omega_0(F') - \Omega_1/c - \Omega$ is equal to $\Delta\omega$ also contribute to the signal).

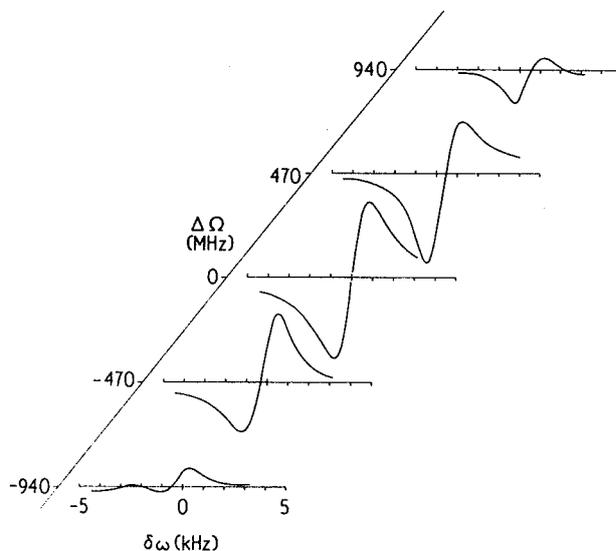


Figure 2. Magnetic resonance signal plotted against microwave frequency displacement $\delta\omega$ (ie derivative of the resonance curves), for various laser detunings $\Delta\Omega$.

In the presence of a sufficiently intense, coherent, nearly resonant optical radiation, the frequency of the 0-0 transition is thus no longer well defined. The curve obtained by plotting the frequency of the signal maximum against the laser frequency is widened and almost reduced to a quasi-linear form whose slope is no longer proportional to the radiation power. We are carrying out further experiments with an atomic beam (in order to reduce the interaction to one HFS transition and one class of velocities) and a more powerful laser. This should allow a clearer observation and a quantitative interpretation of the phenomena occurring for high intensities.

Finally, light shifts in ground states may be used for some practical applications. The experimental set-up described here has been used to test the frequency stability of the GaAs laser by monitoring the frequency of the 0-0 resonance (Picqué and Roizen 1975), and conversely, to stabilize the laser frequency with reference to a microwave frequency standard (Arditi and Picqué 1975).

References

- Arditi M and Carver T R 1961 *Phys. Rev.* **124** 800-9
Arditi M and Picqué J-L 1975 *Opt. Commun.* submitted
Autler S H and Townes C H 1955 *Phys. Rev.* **100** 703-22
Barrat J P and Cohen-Tannoudji C 1961 *J. Phys. Radium* **22** 329-36, 443-50
Bonch-Bruevich A M, Kostin N N, Khodovoi V A and Khromov V V 1969 *Zh. Eksp. Teor. Fiz.* **56** 144-50
(*Sov. Phys.-JETP* **29** 82-5)
Cohen-Tannoudji C 1962 *Ann. Phys., Paris* **7** 423-60
Davidovits P and Novick R 1966 *Proc. IEEE* **54** 155-70
Fried B D and Conte S D 1961 *The Plasma Dispersion Function* (New York: Academic Press)
Happer W and Mathur B S 1967 *Phys. Rev.* **163** 12-25
Liao P F and Bjorkholm J E 1975 *Phys. Rev. Lett.* **34** 1-4
Mathur B S, Tang H and Happer W 1968 *Phys. Rev.* **171** 11-9
McGillis D A and Krause L 1967 *Phys. Rev.* **153** 44-50
Picqué J-L 1974 *IEEE J. Quant. Electron.* **QE-10** 892-7
Picqué J-L and Roizen S 1975 *Appl. Phys. Lett.* **27** 339-41
Picqué J-L, Roizen S, Stroke H H and Testard O 1975 *Appl. Phys.* **6** 373-9

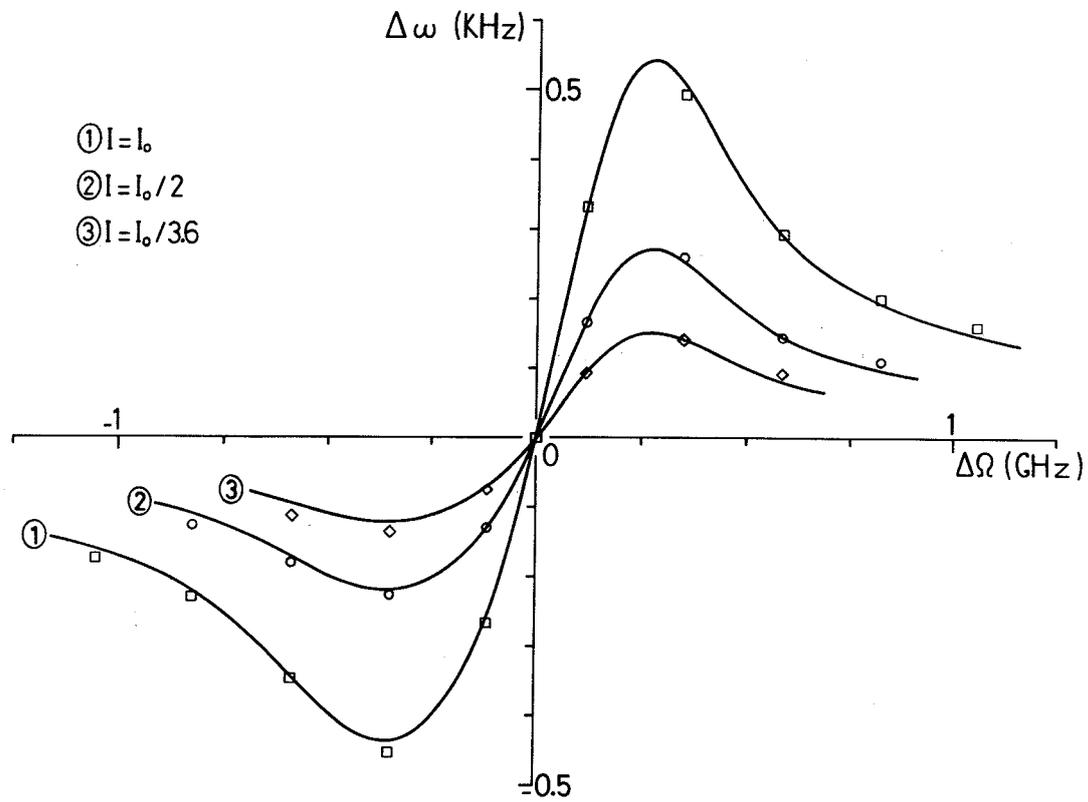
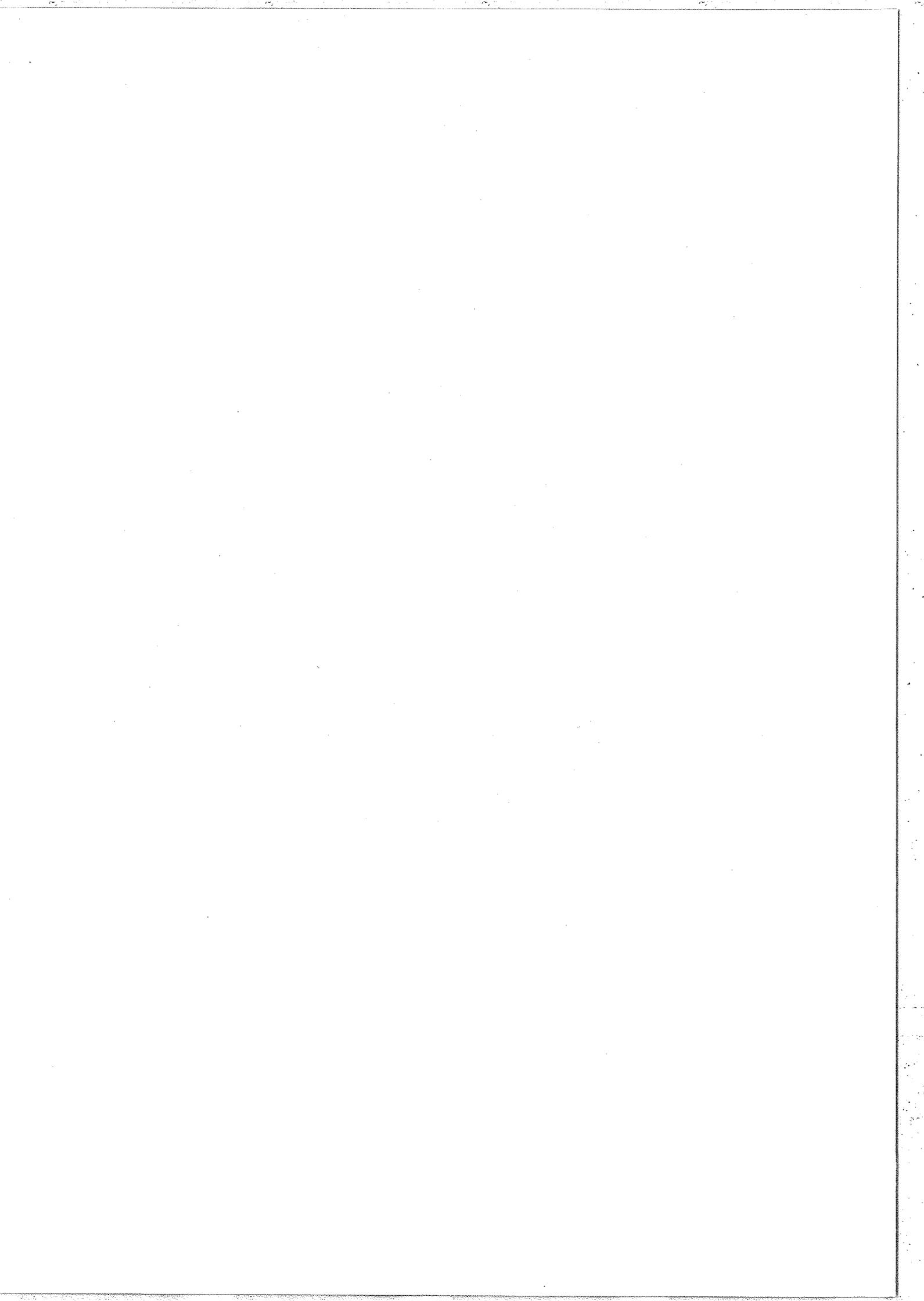


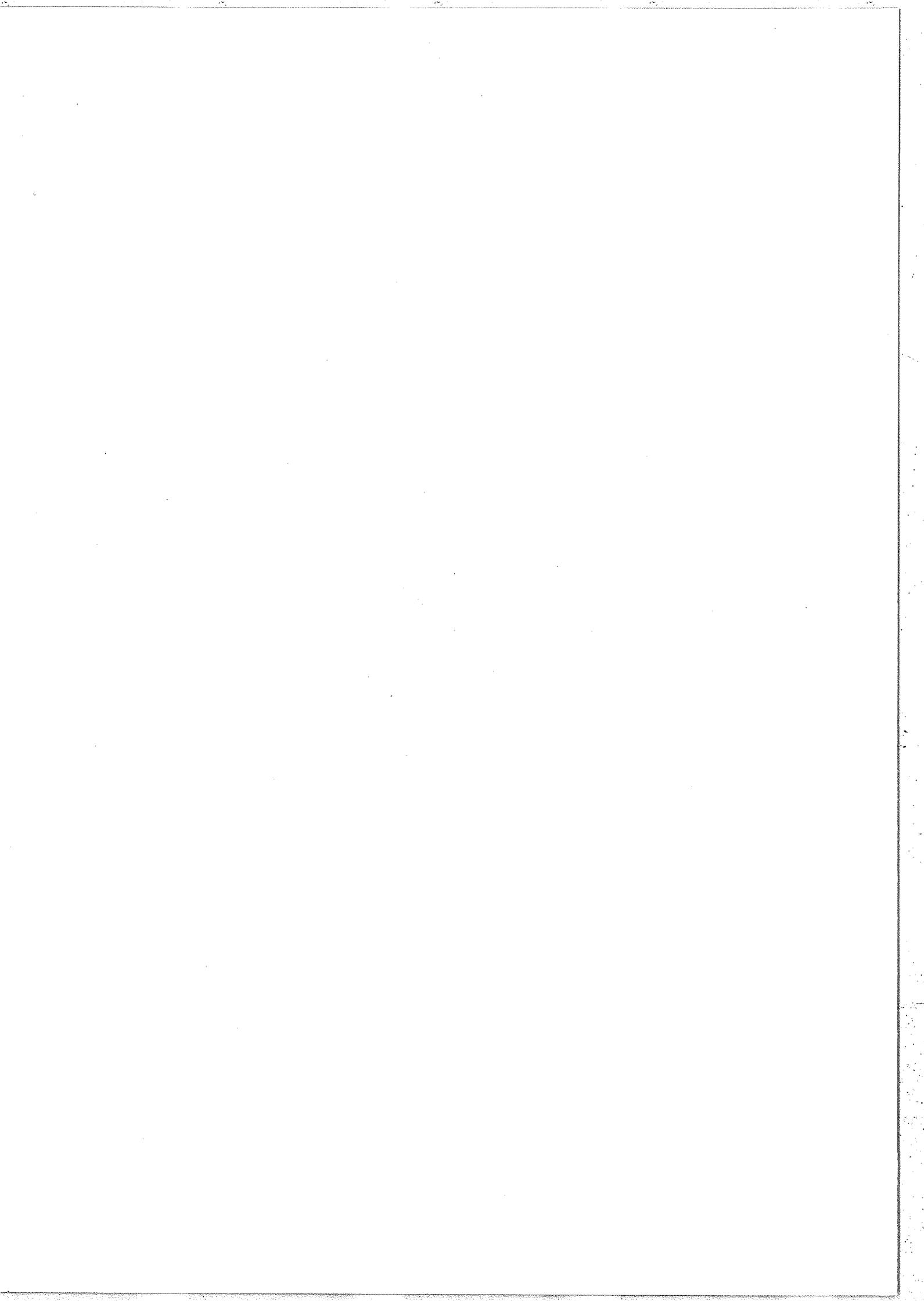
Fig. 3 - Effet de la puissance du rayonnement. Points expérimentaux et courbes théoriques représentant le "light-shift" $\Delta\omega$ de la transition $F=3, m_F=0 \leftrightarrow F=4, m_F=0$ en fonction du désaccord $\Delta\Omega$ du laser, pour diverses intensités I du faisceau lumineux.
 Gaz tampon : néon, 6 torr.



B - RAYONNEMENT DE FORTE INTENSITE :L'ANALOGUE OPTIQUE DE L'EFFET AUTLER-TOWNES.

Titre de l'article : Observation directe de l'effet Autler-Townes
dans le domaine optique.

Résumé : Nous décrivons une expérience d'excitation en 2 étages réalisant l'analogue optique de l'expérience effectuée par Autler et Townes dans le domaine des radiofréquences. Nous avons excité un jet atomique de sodium à l'aide de 2 lasers à colorant continus : l'un fournissait un rayonnement "pompe" de forte intensité, verrouillé à la composante hyperfine $3\ ^2S_{1/2}, F=2 \longleftrightarrow 3\ ^2P_{3/2}, F=3$ de la raie D_2 ; l'autre fournissait un rayonnement "sonde" de faible intensité, dont la fréquence était déplacée au voisinage de la transition hyperfine $3\ ^2P_{3/2}, F=3 \longleftrightarrow 5\ ^2S_{1/2}, F=2$. Nous avons nettement mis en évidence le dédoublement de la transition sonde et vérifié approximativement sa proportionnalité à l'amplitude du champ électrique du faisceau pompe.



LETTER TO THE EDITOR

Direct observation of the Autler-Townes effect in the optical range

J L Picqué and J Pinard

Laboratoire Aimé Cotton, CNRS II, Bâtiment 505, 91405-Orsay, France

Received 19 January 1976

Abstract. A two-step optical resonance experiment, which realizes the optical analogue of the Autler-Townes experiment, has been performed on a sodium atomic beam excited by two cw narrow-band dye lasers. An intense laser radiation was locked to a component of the D_2 resonance line while a weak laser radiation probed an upper, connected transition. A dynamic Stark splitting of the probe transition was clearly observed for various intensities of the strong resonant radiation.

Autler and Townes (1955) have shown, in a well known experiment on the molecule OCS, that a microwave transition can split into two components when one of the two levels involved in the transition is coupled to a third one by a strong RF field. The use of intense coherent light from lasers should allow the observation of a similar phenomenon in the case of two optical transitions sharing a common level. Indeed, the splitting of an optical line was recently observed in a cross-saturated absorption experiment performed inside a laser cavity (Schabert *et al* 1975a, b). However, the combination of velocity and radiation power effects and the interaction with standing waves† make the interpretation of this experiment complicated. The dynamic Stark effect has also been studied in experiments of another type (Schuda *et al* 1974, Walther 1975, Wu *et al* 1975) and these lead to a quite different theoretical analysis (Cohen-Tannoudji 1976 and references therein). There, a single optical transition was involved and the fluorescence under strong resonant laser excitation was spectrally analysed.

We report in this letter the first observation of the direct optical analogue of the Autler-Townes effect. This was done in a two-step optical resonance experiment performed on a sodium atomic beam with the use of two cw narrow-band tuneable dye lasers (Duong *et al* 1974). An intense laser radiation with fixed frequency was tuned to a hyperfine component of the D_2 line. In a second excitation step, a weaker radiation was used to probe a coupled hyperfine transition by monitoring the population of the higher level. This method allowed the study of the dynamic Stark effect for free atoms with a given axial velocity.

Our experiment can be essentially described in terms of the simple model (figure 1(a)) of a three-level system, at rest, interacting with two quasi-resonant monochromatic radiations. A detailed semiclassical analysis of this model has been published

† A similar saturated-absorption experiment has just been achieved in our laboratory with the active cell located outside the laser cavity (Cahuzac and Vetter 1976).

L78

Letter to the Editor

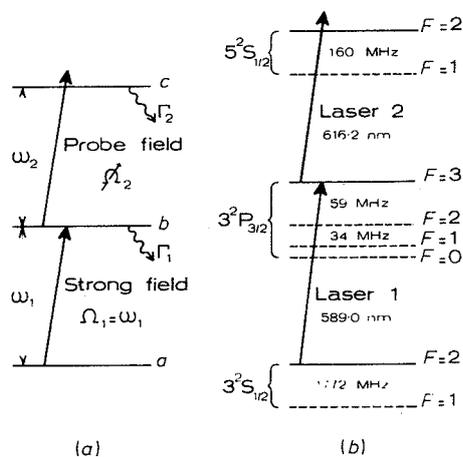


Figure 1. (a) Three-level model. (b) Actual energy levels in sodium (not to scale).

recently (Feneuille and Schweighofer 1975). The simplified atomic system includes a ground state $|a\rangle$ and two excited states $|b\rangle$ and $|c\rangle$ with radiative lifetime Γ_1^{-1} and Γ_2^{-1} respectively. The energy differences are denoted $\hbar\omega_1 = E_b - E_a$ and $\hbar\omega_2 = E_c - E_b$. The atom interacts with a strong perturbing radiation with frequency $\Omega_1 = \omega_1$, linear polarization \hat{e}_1 , electric field amplitude E_1 , and a weak probe radiation with corresponding characteristics $\Omega_2 = \omega_2 + \delta_2$, \hat{e}_2 , E_2 . The strength of the electromagnetic coupling is represented by the parameters $V_1 = \hbar^{-1} E_1 \langle a | \mathbf{D} \cdot \hat{e}_1 | b \rangle$ and $V_2 = \hbar^{-1} E_2 \langle b | \mathbf{D} \cdot \hat{e}_2 | c \rangle$, \mathbf{D} being the atomic electric-dipole operator. One can neglect the power effects of the weak field in the probe field approximation $V_2 \ll V_1$, Γ_1 , Γ_2 . The problem is therefore reduced to the classical two-level problem[†]. In the strong field limit $V_1 \gg \Gamma_1, \Gamma_2$, damping phenomena do not modify the theoretical results. As in the case studied by Autler and Townes (1955), the probe transition is expected to split for $\Omega_1 = \omega_1$ into two symmetrical components shifted by the Rabi nutation frequency V_1 .

The diagram of the actual energy levels of the sodium atom is shown in figure 1(b). The levels indicated in full lines approximately represent the three-level system of figure 1(a). This is justified by the strength of the resonantly excited hyperfine transition $3^2S_{1/2} F=2 \leftrightarrow 3^2P_{3/2} F=3$, which is significantly larger than that of the neighbouring transitions (about 3 times with respect to $F=2 \leftrightarrow F=2$ and 14 times with respect to $F=2 \leftrightarrow F=1$). This transition is also favoured because it cannot produce hyperfine optical pumping of the ground state. Concerning the probe line, the electric-dipole selection rules only allow a single, connected, upper transition $3^2P_{3/2} F=3 \leftrightarrow 5^2S_{1/2} F=2$.

The experimental set-up is schematized in figure 2. Two dye-laser light beams, linearly polarized, propagating collinearly and in opposite directions, crossed the sodium atomic beam at right angles. The collimation of the atomic beam (300) was high enough to avoid any significant Doppler broadening. The rhodamine 6G dye lasers were operated single mode with a narrow linewidth. The beam from laser 1 was focused on the atomic beam to a section of 1 mm^2 . After attenuation, the

[†] The behaviour of a two-level atom interacting with a strong resonant electromagnetic field can be clearly visualized by using the concept of 'dressed atom' (Cohen-Tannoudji and Haroche 1969).

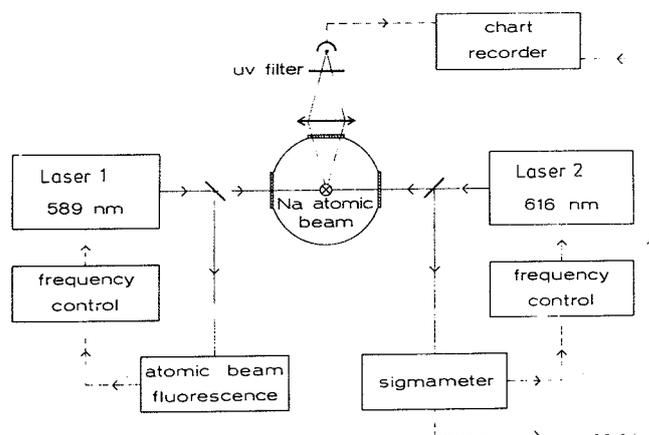


Figure 2. Simplified scheme of the experimental set-up.

beam from laser 2 was focused to a smaller spot in order to probe the effect of laser 1 over an area with homogeneous power distribution. Under these conditions, the light-beam intensities at the interaction region were respectively of the order of $I_1 = 1 \text{ W cm}^{-2}$ for the perturbing laser 1 and $I_2 = 0.1 \text{ W cm}^{-2}$ for the probe laser 2. This corresponds to $V_1/V_2 > 10$ and, the width of the sodium resonance state being $\Gamma_1 \approx 10 \text{ MHz}$, $V_1/\Gamma_1 \sim 5$.

The frequency of laser 1 was matched to the $3^2S_{1/2} F = 2 \leftrightarrow 3^2P_{3/2} F = 3$ hyperfine component of the 589.0 nm D_2 resonance line. The achievement of zero detuning was ensured by stabilizing the laser frequency (very weakly modulated) to the centre of the atomic line. The atomic beam fluorescence produced by an auxiliary light beam, taken from laser 1 output, was used to this effect.

The frequency of laser 2 was scanned around the $3^2P_{3/2} F = 3 \leftrightarrow 5^2S_{1/2} F = 2$ hyperfine component of the 616.2 nm line. The laser frequency was servo-controlled with reference to a 'sigmameter' (Juncar and Pinard 1975). This Michelson-type device served both to pilot the laser frequency by steps of 3.75 MHz and to simultaneously provide a frequency calibration.

The population of the $5^2S_{1/2}$ state (which decays to the 4P and 3P excited states) was monitored by the light spontaneously emitted from the 4P state. The intensity of this uv fluorescence (330 nm) was recorded as a function of the laser 2 frequency for various intensities of laser 1 obtained with calibrated optical attenuators. The linewidth of the single resonance observed with the laser 1 attenuated enough to get no power effects was less than 20 MHz. However, for high intensities of laser 1, it appeared that the resolution in the probe spectra was very sensitive to spatial inhomogeneities of the light beam.

Typical recordings are reproduced in figure 3. The Autler-Townes splitting appears very clearly for relatively low light intensities I_1 . The ratio of the measured spacings of the two components: $\Delta = 90 \text{ MHz}$ in figure 3(a) and $\Delta = 52 \text{ MHz}$ in figure 3(b), equals the square root $\sqrt{3}$ of the intensity attenuation factor. More generally, the quantity $\Delta/\sqrt{I_1}$ was found constant to within 10%. This result constitutes a crude verification of the proportionality of the splitting to the amplitude of the strong AC electric field. Accounting for the poor accuracy of absolute intensity measurements, the calculated values of I_1 (deduced from $\Delta = 2V_1$) were consistent

L80

Letter to the Editor

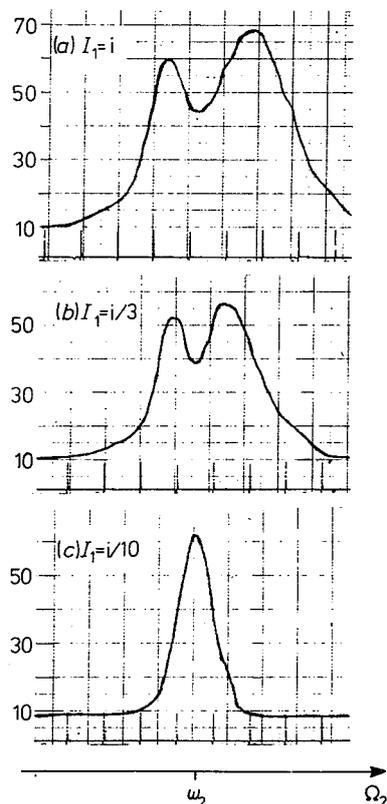


Figure 3. Experimental probe spectra, i.e. population of the $5^2S_{1/2}$ state plotted against laser 2 frequency Ω_2 , for various intensities I_1 of laser 1 ($\Omega_1 = \omega_1$, $i \approx 0.9 \text{ W cm}^{-2}$). The frequency scale is given by pulses recorded each 10 steps (37.5 MHz) of the sigma-meter scanning. (Scan rate 400 MHz min^{-1} , detection time constant 0.4 s).

with the directly measured values. The optical Autler-Townes effect could be applied to precise determinations of laser beam intensities, as actually experienced by the interacting atoms.

In contradistinction with the predictions of the three-level model of figure 1(a), the experimental doublet is seen to be asymmetric. The high frequency side of the probe spectrum is enhanced. This is due to the adjacent transition $3^2S_{1/2} F = 2 \leftrightarrow 3^2P_{3/2} F = 2$ (see figure 1(b)), distant from the resonant transition by an amount of the order of V_1 . Even when treating the probe field as a weak perturbation, one has to solve a three-level problem to take into account the effect of this transition (Higgins 1975). The mixing of the $3^2P_{3/2} F = 3$ and $F = 2$ states by the strong field thus permits probe transitions to both states $5^2S_{1/2} F = 2$ and $F = 1$. This has been experimentally confirmed by the appearance of a number of distinct resonances when detuning the laser 1.

Nevertheless, although the influence of the state $3^2P_{3/2} F = 2$ on the low-frequency component of the doublet should be weak, this component is broader than expected. This arises mainly from the degeneracy of the Zeeman- π transitions excited by the laser; a different value of the splitting is associated with each of these transitions. Finally, a complete theory should involve the solution of a three-level problem (in

Letter to the Editor

L81

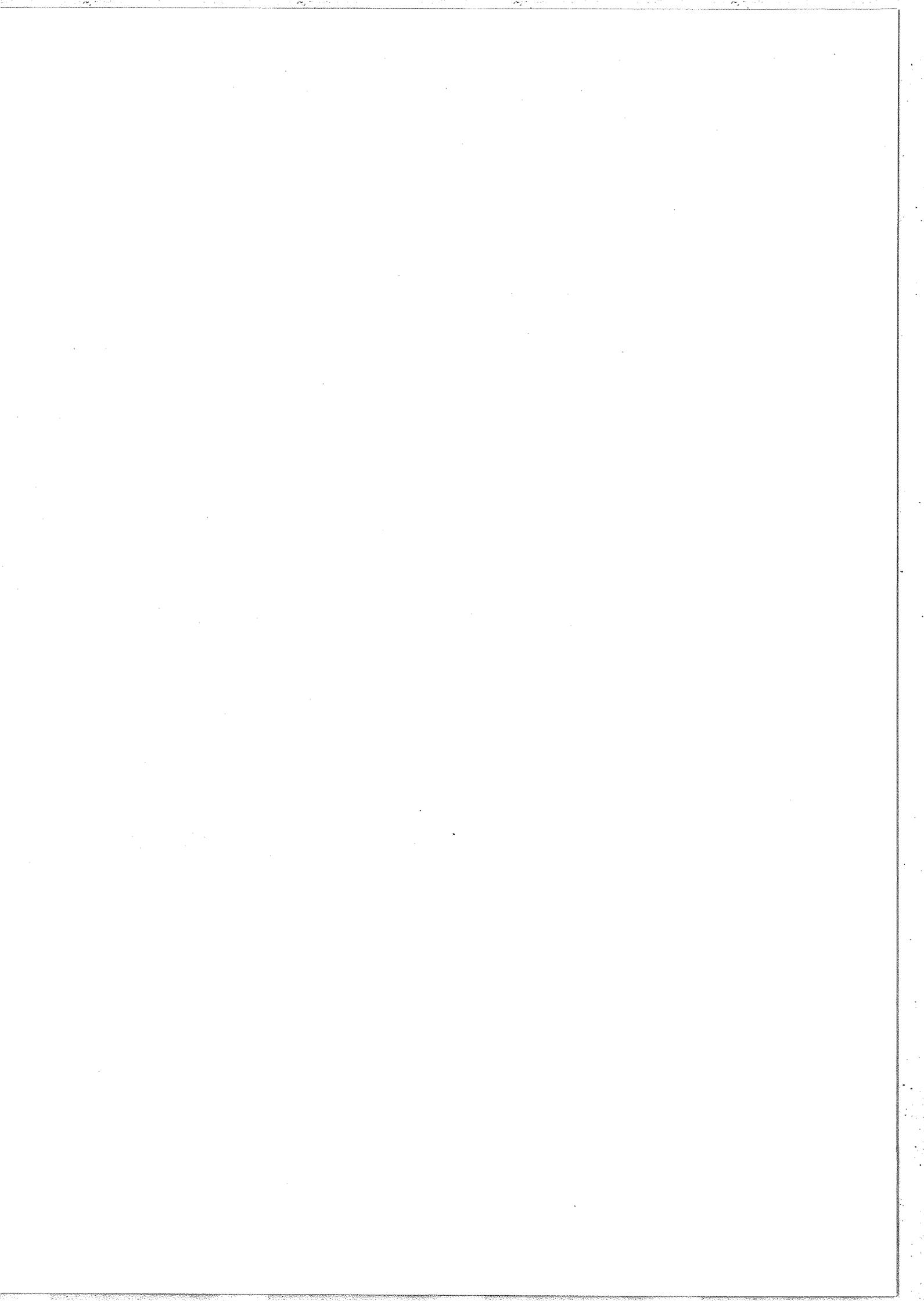
the probe field approximation), with allowance for level degeneracy (Higgins 1975) and optical pumping.

In conclusion, we have observed the dynamic Stark splitting of an optical line in a system of two coupled transitions not subject to Doppler effect. Further studies have been done as a function of the detuning of the intense radiation, and will be reported in a forthcoming paper.

We are grateful to Dr S Feneuille for numerous discussions and for valuable comments.

References

- Autler S H and Townes C H 1955 *Phys. Rev.* **100** 703-22
 Cahuzac P and Vetter R 1976 *Phys. Rev.* to be published
 Cohen-Tannoudji C 1976 *Summer School of Les Houches 1975* (Amsterdam: North-Holland) to be published
 Cohen-Tannoudji C and Haroche S 1969 *J. Physique* **30** 153-68
 Duong H T, Liberman S, Pinard J and Vialle J L 1974 *Phys. Rev. Lett.* **33** 339-41
 Feneuille S and Schweighofer M G 1975 *J. Physique* **36** 781-6
 Higgins R B 1975 *J. Phys. B: Atom. Molec. Phys.* **8** L321-5
 Juncar P and Pinard J 1975 *Opt. Commun.* **14** 438-41
 Schabert A, Keil R and Toscheck P E 1975a *Appl. Phys.* **6** 181-4
 — 1975b *Opt. Commun.* **13** 265-7
 Schuda F, Stroud C R Jr and Hercher M 1974 *J. Phys. B: Atom. Molec. Phys.* **7** L198-202
 Walther H 1975 *Laser Spectroscopy* (Berlin: Springer-Verlag) pp 358-69
 Wu F Y, Grove R E and Ezekiel S 1975 *Phys. Rev. Lett.* **35** 1426-9



CONCLUSION GENERALE

En conclusion à ce mémoire, nous allons tenter de dresser un bilan et d'ouvrir quelques perspectives.

Nous rappelons d'abord dans la liste suivante, par ordre chronologique, les principaux résultats originaux que nous avons pu obtenir au cours de ce travail :

- Mise en évidence nette de la déviation et de l'élargissement d'un jet atomique par pression de radiation ;
- Mise au point de méthodes de spectroscopie par jet atomique et rayonnement monochromatique accordable (déviation magnétique, photo-déviation) permettant une détection non-optique de la résonance optique;
- Démonstration, à travers la résolution de la structure hyperfine des raies de résonance du sodium, des possibilités de la spectroscopie laser "sans effet Doppler" ;
- Mise au point d'un laser à GaAs présentant des caractéristiques adaptées à la spectroscopie à très haute résolution ;
- Etude du "light-shift" d'une transition micro-onde en fonction de la fréquence d'un rayonnement optique monochromatique ;
- Mise en évidence de l'effet Autler-Townes dans le domaine optique;
- Etude du pompage optique par un rayonnement laser monochromatique d'une transition entre 2 niveaux possédant une structure Zeeman ;
- Détection non-optique d'effets de croisements de niveaux.

Il nous reste à mentionner brièvement certains prolongements possibles de notre travail.

Nous avons déjà noté qu'on pourrait éventuellement affiner le fonctionnement du laser à GaAs en plaçant le cristal dans une cavité externe. Par ailleurs, le domaine spectral pourrait être agrandi en employant des lasers à GaAs susceptibles de fonctionner en régime continu jusqu'à la température ambiante. Rappelons également que la technique que nous avons développée pour le laser à GaAs est applicable aux autres lasers semi-conducteurs à jonction, dont les longueurs d'onde couvrent un domaine s'étendant jusqu'à 30 micromètres dans l'infra-rouge.

La spectroscopie par jet atomique et laser accordable, dont la méthodologie est maintenant acquise, est entrée dans sa phase d'exploitation et devrait continuer à fournir de nombreux résultats. Au Laboratoire Aimé Cotton en particulier, notre travail a été à l'origine d'un développement important de ce domaine de recherche au cours de ces dernières années.

La sensibilité de la détection non-optique a déjà été mise en pratique pour l'étude d'atomes radioactifs. En effet, c'est une méthode de déviation magnétique qui a été choisie pour la mesure de déplacements isotopiques dans une chaîne d'isotopes du sodium riches en neutrons, au cours d'une expérience en ligne avec un accélérateur de protons. Une première expérience a été effectuée auprès du synchro-cyclotron d'Orsay par une équipe à laquelle participait notre laboratoire [1]. Une expérience complémentaire se déroule actuellement au C.E.R.N. . La même méthode pourrait être étendue aux isotopes du césium, dont l'étude devrait fournir des résultats intéressants dans la mesure où ils sont situés au voisinage du nombre magique de neutrons 82 . On pourrait dans ce but utiliser le laser à GaAs comme nous l'avons fait nous-mêmes dans le cadre de ce travail. L'extension récente du domaine spectral des lasers à colorant rend également envisageable leur emploi dans une telle expérience.

De son côté, la méthode de photo-déviatio n peut donner lieu à la séparation spatiale d'atomes d'un isotope donné [2], mais aussi d'atomes portés dans un état déterminé par pompage optique. Nous avons montré par ailleurs comment la photo-déviatio n pourrait être utilisée dans une méthode de résonance magnétique sur jet atomique qui, par opposition à la méthode de Rabi, n'exigerait pas l'emploi de champs magnétiques non-uniformes. Nous avons également noté que la photo-déviatio n se prête à la sélection d'atomes lents du jet atomique et, par suite, à une réduction de la largeur de raie [XIII].

Dans nos expériences, les atomes du jet atomique interagissaient avec une onde progressive résonnante. Dans ces conditions, les processus efficaces pour la photo-déviatio n sont les processus absorption-émission spontanée. Il en résulte une dispersion des trajectoires déviées (liée à l'isotropie de l'émission spontanée) et une saturation de la déviatio n moyenne lorsqu'on augmente l'intensité du rayonnement. Ces expériences pourraient être reprises dans le cas d'une onde stationnaire. Les quantités de mouvement acquises lors de l'absorption et de l'émission induite de photons de direction opposée s'ajoutent alors. Grâce au rôle de l'émission induite, on pourrait ainsi produire une déviatio n plus importante et plus directive.

Nous avons montré dans ce mémoire, en particulier sur l'exemple de la transition $F=2 \longleftrightarrow F'=1$, que dans le cas du pompage optique par un rayonnement monochromatique, une partie importante du signal d'effet Hanle est due à la variation des populations de l'état excité. Les expériences de croisements de niveaux en détection optique pourraient être complétées en effectuant une détection sélective de l'alignement de l'état excité.

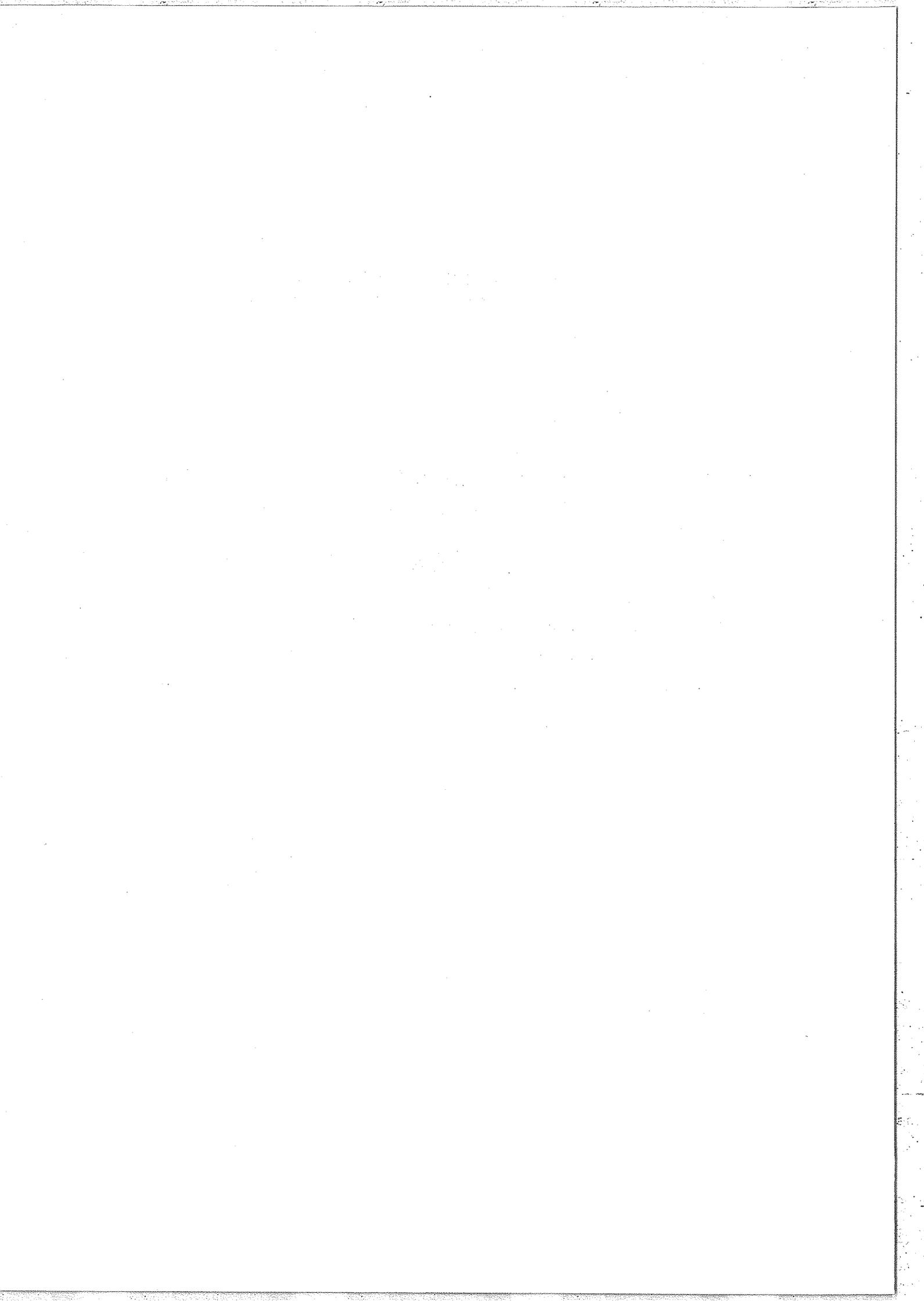
L'expérience concernant l'effet Autler-Townes avait essentiellement pour but la mise en évidence de cet effet dans le domaine optique. Rappelons qu'il s'agissait d'une expérience d'excitation en 2 étages, mettant en œuvre respectivement un rayonnement laser de forte intensité

et de fréquence fixe (rayonnement "pompe") et un rayonnement laser de faible intensité et de fréquence variable (rayonnement "sonde"). Une étude plus précise pourrait être effectuée si l'on disposait pour le premier étage de l'excitation d'un véritable système à 2 niveaux. Un tel système peut être préparé, dans le cas de la transition hyperfine $F=2 \longleftrightarrow F'=3$ du sodium que nous avons utilisée, en effectuant une interaction préalable avec un faisceau lumineux de polarisation circulaire σ_+ [3]. L'interaction avec un faisceau pompe de même polarisation est alors limitée au système à 2 niveaux $F=2, m=2 \longleftrightarrow F'=3, m'=3$. Une autre possibilité consisterait à utiliser les raies de résonance $J=0 \longleftrightarrow J'=1$ du baryum (5535 \AA) ou de l'ytterbium (5556 \AA), qu'il est facile d'exciter à l'aide d'un laser à colorant. Un rayonnement pompe de polarisation linéaire π ne couplerait alors que 2 niveaux $J=0, m=0 \longleftrightarrow J'=1, m'=0$.

L'étude de l'effet Stark dynamique produit par un rayonnement laser intense peut prendre d'autres formes. Dans des expériences récentes, une seule transition en interaction résonnante avec le rayonnement pompe était utilisée, et on effectuait une analyse spectrale de la fluorescence issue du niveau excité [4, 3]. L'absorption (ou l'amplification) d'un rayonnement sonde a aussi été étudiée directement au voisinage de la transition saturée par le rayonnement pompe [5]. On peut imaginer d'étendre ces divers types d'expériences à des situations plus complexes, pour lesquelles il apparaîtrait un plus grand nombre de composantes dans les spectres d'absorption sur un faisceau sonde ou de fluorescence. Ce serait par exemple le cas si on employait 2 rayonnements pompe quasi-résonnants vis-à-vis d'une même transition ou respectivement quasi-résonnants vis-à-vis de 2 transitions couplées. Les effets de la dégénérescence Zeeman des transitions et de la polarisation des faisceaux de pompage et de détection pourraient également être étudiés en détails.

BIBLIOGRAPHIE DE LA CONCLUSION

- [1] G. Huber, C. Thibault, R. Klapisch, H. T. Duong, J.-L. Vialle, J. Pinard, P. Juncar et P. Jacquinet, Phys. Rev. Lett. 34, 1209 (1975).
- [2] A. F. Bernhardt, D. E. Duerre, J. R. Simpson et L. L. Wood, Appl. Phys. Lett. 25, 617 (1974).
- [3] R. E. Grove, F. Y. Wu et S. Ezekiel, Phys. Rev. A15, 227 (1977).
- [4] F. Schuda, C. R. Stroud Jr. et M. Hercher, J. Phys. B 7, L198 (1974).
- [5] F. Y. Wu, S. Ezekiel, M. Ducloy et B. R. Mollow, Phys. Rev. Lett. 38, 1077 (1977).



LISTE DE PUBLICATIONS

- [I] "Etude de l'Effet Stark dans les raies de résonance du sodium par une méthode de jet atomique"
H. T. Duong et J.-L. Picqué
Journal de Physique 33, 513 (1972).
- [II] "Atomic-beam deflection and broadening by recoils due to photon absorption or emission"
J.-L. Picqué et J.-L. Vialle
Optics Communications 5, 402 (1972).
- [III] "Optical resolution of the hyperfine structure of the Na D lines by atomic-beam absorption from a CW tunable dye laser"
H. T. Duong, P. Jacquinet, S. Liberman, J.-L. Picqué,
J. Pinard et J.-L. Vialle
Optics Communications 7, 371 (1973).
- [IV] "High resolution spectroscopic application of atomic-beam deflection by resonant light"
P. Jacquinet, S. Liberman, J.-L. Picqué et J. Pinard
Optics Communications 8, 163 (1973).
- [V] "Hyperfine optical pumping of cesium with a CW GaAs laser"
J.-L. Picqué
I. E. E. E. Journal of Quantum Electronics 10, 892 (1974).
- [VI] "CW, single-mode, tunable GaAs laser system with good frequency stability"
J.-L. Picqué, S. Roizen, H. H. Stroke et O. Testard
Applied Physics 6, 373 (1975).

- [VII] "Frequency-controlled CW tunable GaAs laser"
J.-L. Picqué et S. Roizen
Applied Physics Letters 27, 340 (1975).
- [VIII] "Precision measurements of light shifts induced by a narrow-band GaAs laser in the 0-0 ^{133}Cs hyperfine transition"
M. Arditi et L.-L. Picqué
Journal of Physics B : Atom. and Molec. Physics 8, L331 (1975).
- [IX] "Light-shift precision measurements of the 0-0 transition in a ^{133}Cs gas cell"
M. Arditi et J.-L. Picqué
Proceedings of the AMCO-5 Conference, publié par Plenum Press (1976).
- [X] "Application of the light-shift effect to laser frequency stabilization with reference to a microwave frequency standard"
M. Arditi et J.-L. Picqué
Optics Communications 15, 317 (1975).
- [XI] "Direct observation of the Autler-Townes effect in the optical range"
J.-L. Picqué et J. Pinard
Journal of Physics B : Atom. and Molec. Physics 9, L77 (1976).
- [XII] "Tunable lasers revisited - New spectroscopic possibilities with semiconductor lasers and recent developments in the study of atom-radiation interactions"
J.-L. Picqué et H. H. Stroke
Comments on Atomic and Molecular Physics 5, 141 (1976).
- [XIII] "Hyperfine optical pumping of a cesium atomic beam, and applications"
J.-L. Picqué
Metrologia (1977).

Au terme de cet exposé, je remercie Monsieur le Professeur P. JACQUINOT et Monsieur le Professeur R. CHABBAL de m'avoir accueilli au Laboratoire Aimé Cotton, où j'ai pu bénéficier de conditions de travail exceptionnelles. Je remercie Monsieur P. JACQUINOT et Monsieur S. FENEUILLE d'avoir suivi avec intérêt la progression de mes recherches et de m'avoir laissé une entière liberté dans leur conduite.

Je garde un excellent souvenir des cours de Monsieur le Professeur C. COHEN-TANNOUDJI, qui m'ont décidé à me diriger vers la physique atomique, et de ceux de Monsieur le Professeur J. BROSSEL, qui m'ont fait choisir les jets atomiques. Je leur suis reconnaissant d'avoir su, comme à bien d'autres étudiants, me communiquer leur enthousiasme pour la recherche. J'ai été très sensible à l'intérêt que Monsieur le Professeur A. KASTLER a bien voulu accorder tout particulièrement à certains aspects de mon travail. Je remercie Monsieur R. KLAPISCH, mon parrain au C. N. R. S., des encouragements qu'il m'a prodigués.

Je suis heureux de pouvoir également remercier, même s'il m'est impossible de tous les citer, tous ceux qui, d'une façon ou d'une autre, m'ont aidé dans l'accomplissement de ce travail.

Je voudrais tout d'abord exprimer ma profonde et amicale reconnaissance à Simon ROIZEN, qui m'a fourni une assistance précieuse et désintéressée tout au long de cette étude. C'est en grande partie grâce à sa compétence et à son dévouement que j'ai pu mener à bien un travail exigeant l'emploi de techniques expérimentales très diverses et pour la plupart nouvelles au laboratoire. Mais plus qu'un ingénieur, il a été le compagnon passionné des nombreuses "manips" que nous avons menées ensemble. Ce travail est aussi le sien...

Je remercie très vivement DUONG HONG TUAN, Jacques PINARD et Jean-Louis VIALLE de leur collaboration à certaines expériences. J'ai trouvé

beaucoup de plaisir à collaborer avec Maurice ARDITI, qui m'a permis l'accès aux techniques des hyperfréquences.

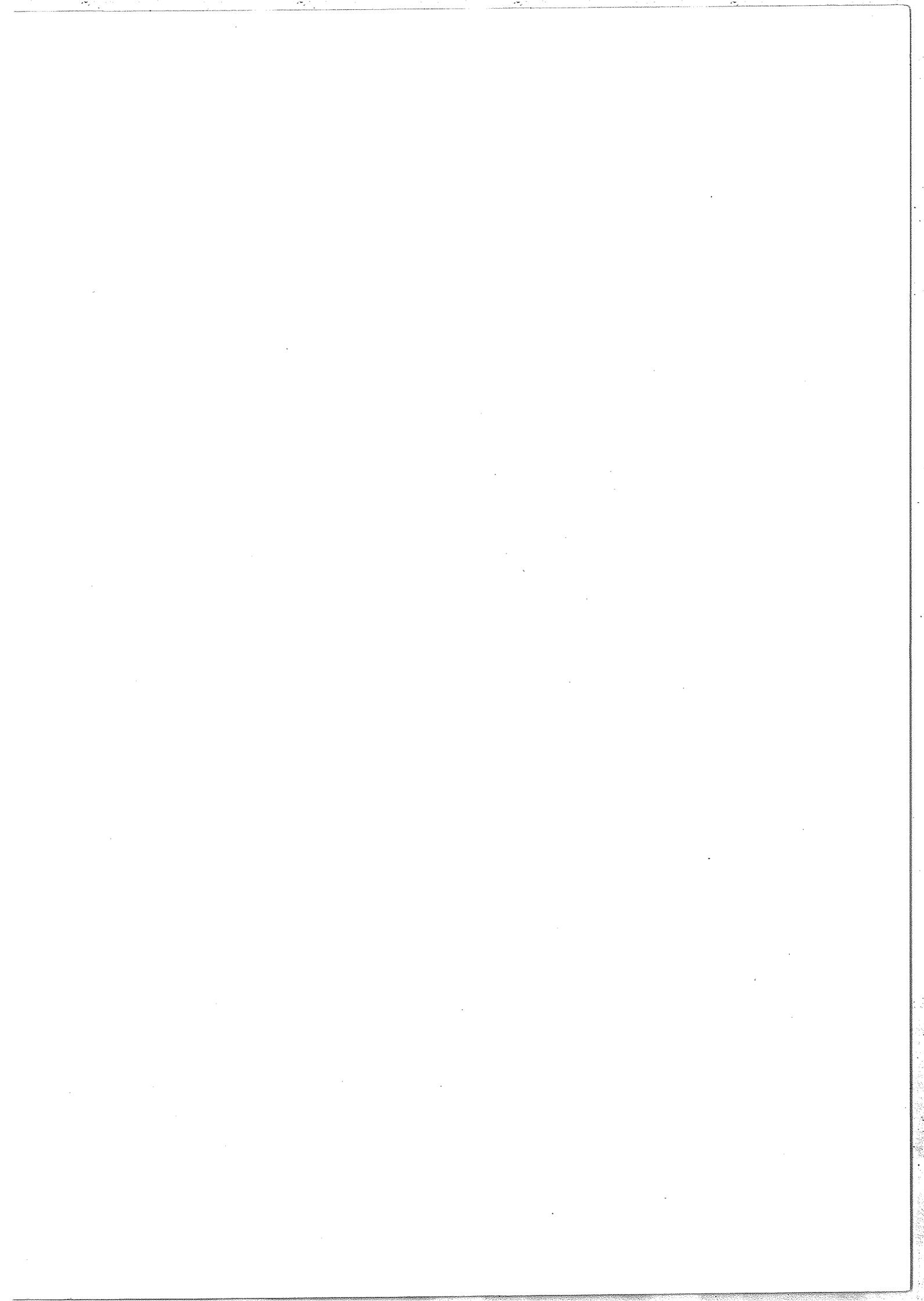
J'ai pu avoir de fréquents échanges avec Henry STROKE lors de ses séjours au laboratoire. Il m'a beaucoup apporté par son expérience et ses connaissances. Je lui suis reconnaissant de la gentillesse et de la disponibilité dont il a toujours fait preuve à mon égard.

J'ai eu la chance, à travers de nombreuses discussions avec Claude COHEN-TANNOUDJI, de pouvoir profiter de sa grande compréhension de la physique. Je lui suis reconnaissant de m'avoir généreusement consacré une partie de son temps, malgré ses nombreuses obligations.

Je remercie Paul LUC, Odile ROBAUX, Marie-Gabrielle SCHWEIGHOFER et Jocelyne SINZELLE de l'aide appréciable qu'ils m'ont fournie en effectuant à ma demande divers calculs sur ordinateur.

Je tiens à souligner combien le concours de l'ensemble du personnel technique du laboratoire m'a été précieux. Je remercie tout particulièrement de leur aimable efficacité ceux à qui j'ai fait le plus souvent appel : Roger LEROUX pour l'électronique, Robert BARONNET et Alain RAYNAL pour la mécanique, Michel OPPENHEIMER pour la verrerie et Gaston GOLMAN pour les couches minces.

Enfin, je remercie chaleureusement les personnes qui se sont chargées avec soin et diligence de la réalisation de ce mémoire : Geneviève FONTAINE pour la dactylographie, Henri CALVIGNAC, Bernard DEMARETS et Michel REY pour l'illustration.



Service de Reprographie

C.N.R.S.

Gif