

ORSAY  
n° d'ordre:

# THESE

## DE DOCTORAT D'ETAT ES-SCIENCES PHYSIQUES

PRESENTÉE A L'UNIVERSITE DE PARIS-SUD

CENTRE D'ORSAY

PAR

Jean-Claude KELLER

LABORATOIRE AIME COTTON

C. N. R. S.

POUR OBTENIR

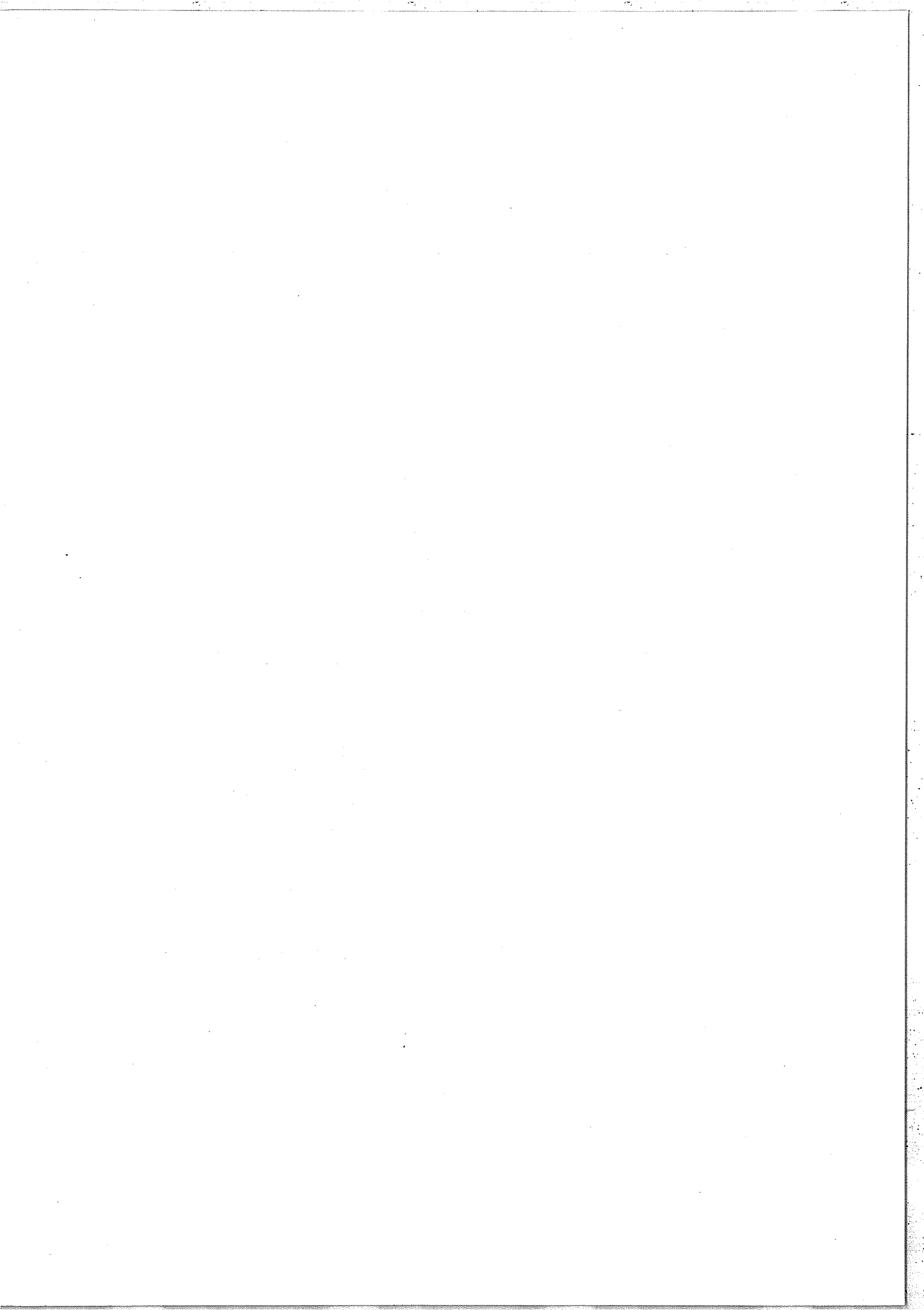
LE GRADE DE DOCTEUR ES-SCIENCES

"SPECTROSCOPIE LASER SANS EFFET DOPPLER :  
- MESURE DE STRUCTURES ATOMIQUES.  
- CONTRIBUTION A L'ETUDE DE L'INTERACTION  
ATOME-RAYONNEMENT DANS LES SYSTEMES  
A 3 NIVEAUX".

SOUTENUE LE 18 mai 1978 DEVANT LA COMMISSION D'EXAMEN

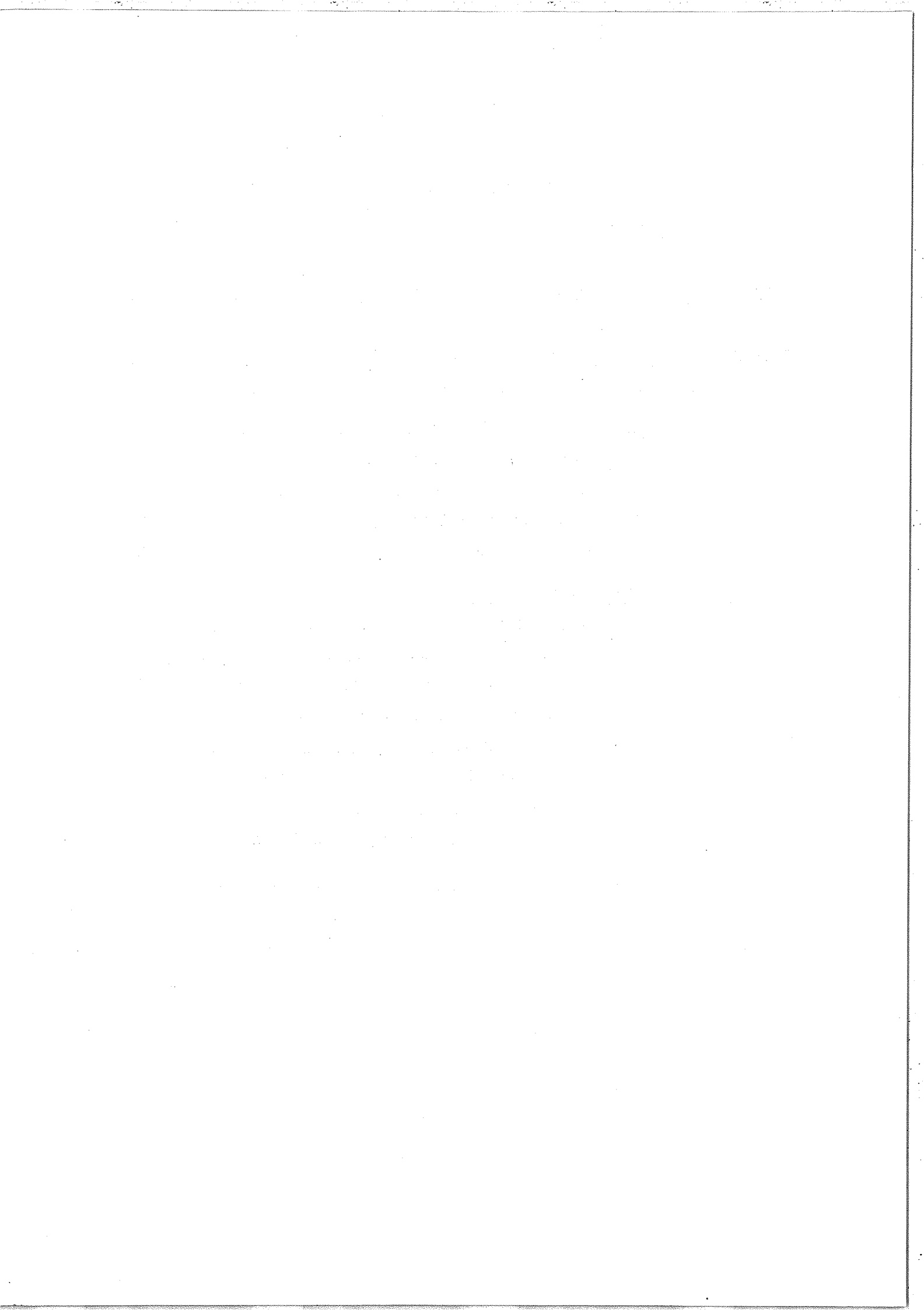
MM. P. JACQUINOT : Président  
J. BADOZ  
C. COHEN-TANNOUJJI  
S. FENEUILLE  
P. TOSCHEK

25 - I - (410)



## TABLE DES MATIERES

<u>INTRODUCTION</u> .....	1
<u>CHAPITRE A : SPECTROSCOPIE LASER AVEC UN JET DE GAZ RARE</u>	
<u>EXCITE</u> .....	5
<u>I. Principe des expériences</u> .....	7
1° - Etude des transitions partant d'un niveau métastable .....	7
2° - Etude des transitions partant d'un niveau résonnant .....	9
<u>II. Dispositif expérimental</u> .....	13
1° - Le jet gazeux .....	13
2° - L'excitation du jet .....	16
3° - La détection des résonances .....	19
a) jet excité par bombardement électronique .....	20
b) jet excité par décharge dans le "four" .....	21
4° - Les lasers, l'étalonnage en fréquence .....	22
<u>III. Résultats expérimentaux</u> .....	23
1° - Jet de néon : structure hyperfine de $^{21}\text{Ne}$ ( $I=3/2$ ) .....	23
2° - Jet de krypton : déplacements isotopiques et structure hyperfine ( $^{83}\text{Kr}$ , $I=9/2$ ) de transitions partant d'un niveau métastable .....	28
3° - Jet de krypton : déplacement isotopique d'une transition partant d'un niveau résonnant .....	32





CHAPITRE B : SPECTROSCOPIE SANS EFFET DOPPLER DANS LES SYSTEMES

A TROIS NIVEAUX : AFFINEMENT DES RAIES INDUIT PAR  
LASER DANS UNE VAPEUR ATOMIQUE (A.L.N.) .....

39

I. Etude théorique .....

41

1° - Modèle "hole-burning" .....

41

a) existence et position des résonances .. 41

b) calcul sur les populations .. 44

c) anisotropie des résonances .. 48

2° - Calcul utilisant la matrice densité .....

49

a) équations d'évolution du système  
atome + champs .....

50

b) approximation des champs faibles .....

53

c) profil des raies de résonance en  
présence d'effet Doppler .....

57

d) discussion du calcul .....

61

II. Etude expérimentale .....

64

1° - Expériences utilisant un laser He-Ne et  
un laser à colorant .....

65

a) le laser He-Ne .....

65

b) le laser à colorant .....

68

c) montage et résultats expérimentaux .....

69

d) mesures de déplacements isotopiques  
et de structures hyperfines .....

73

2° - Expériences utilisant deux lasers à  
colorant .....

78

a) les lasers .....

79

b) les montages expérimentaux .....

79

c) exemples de signaux obtenus .....

80

CHAPITRE C : EFFET STARK DYNAMIQUE DANS LES SYSTEMES à TROIS

NIVEAUX (EFFET AUTLER-TOWNES OPTIQUE) .....

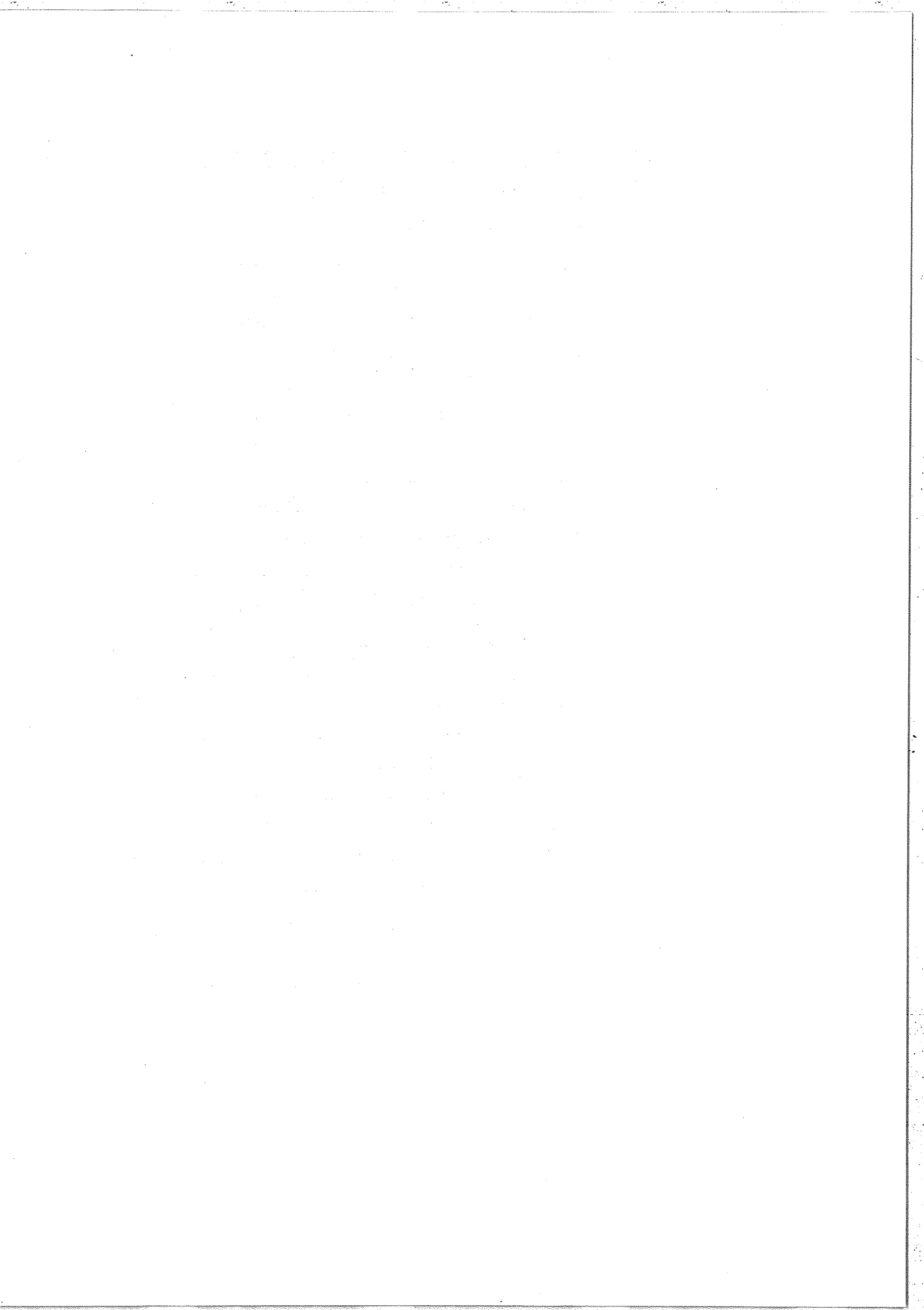
87

I. Etude théorique .....

89

1° - Atomes immobiles .....

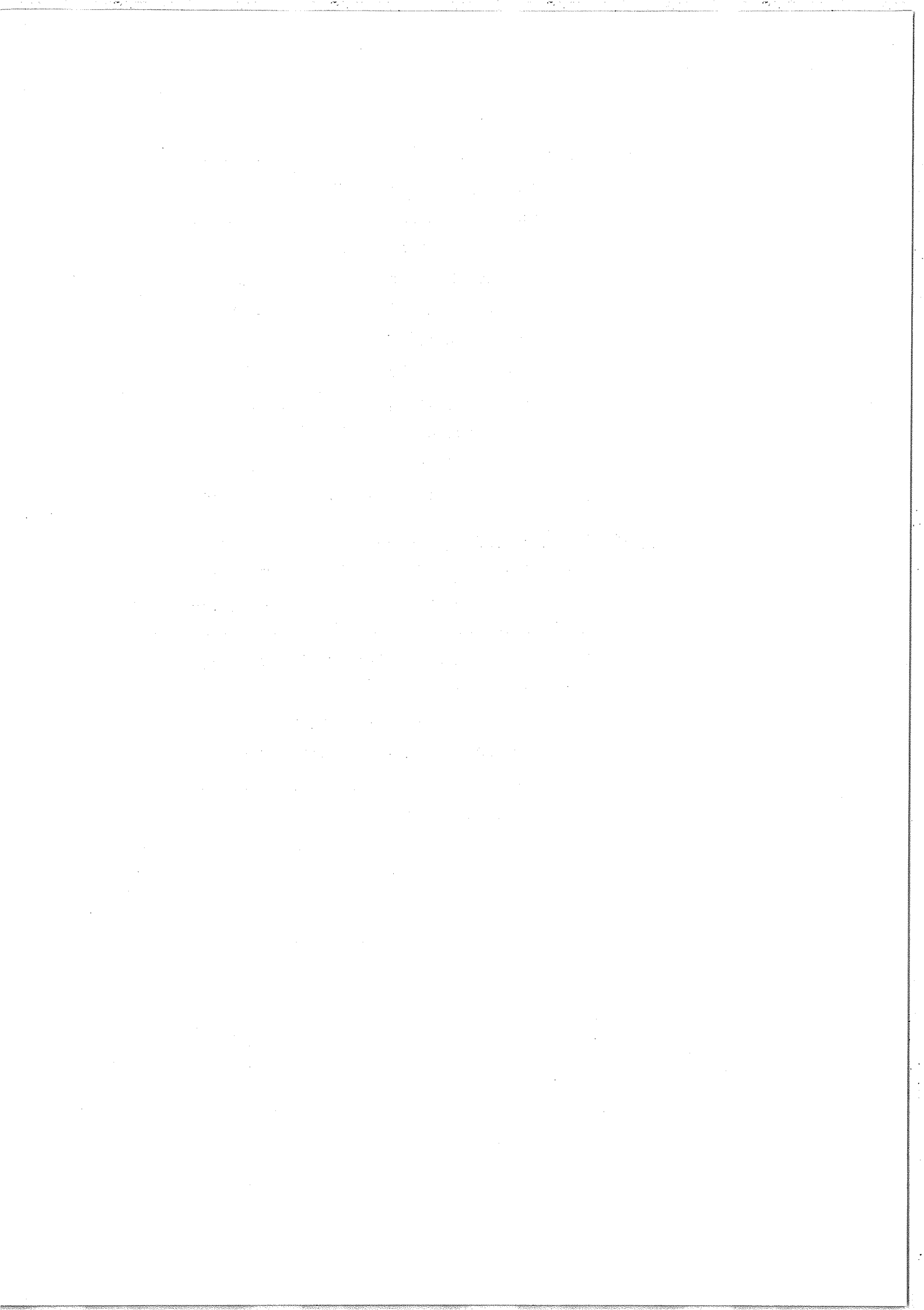
89



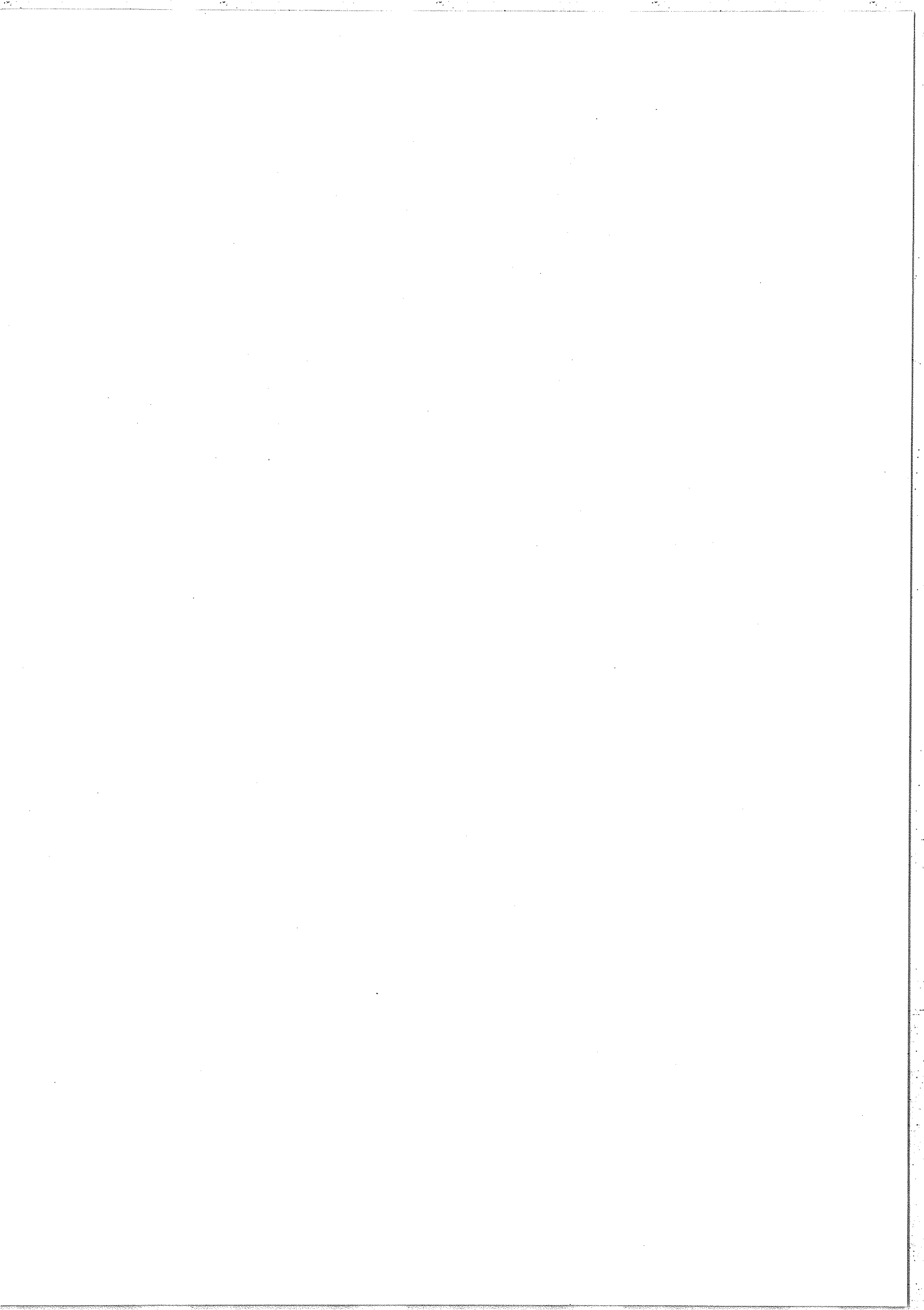
2° - Atomes en mouvement .....	92
a) effet Doppler dans le système à trois niveaux .....	92
b) discussion graphique dans l'approxi- mation du champ sonde faible .....	93
c) diagramme d'énergie de l'atome habillé et effet Doppler .....	98
d) cas particuliers dans le néon : discussion graphique .....	99
e) cas particuliers dans le néon : calculs numériques .....	103
3° - Discussion : limites de l'étude théorique	107
II. <u>Etude expérimentale</u> .....	108
1° - Expériences utilisant un laser He-Ne et un laser à colorant .....	110
a) description du montage expérimental ....	110
b) observation de l'effet Autler-Townes et de ses caractéristiques .....	111
c) effets liés aux polarisations des lasers et à la dégénérescence des niveaux .....	114
2° - Expériences utilisant deux lasers à colorant .....	117
a) le montage expérimental .....	117
b) effet Autler-Townes : observation, influence du désaccord de fréquence du laser intense .....	118

CHAPITRE D : DICHOÏSME ET BIREFRINGENCE INDUITS PAR UN LASER

<u>POLARISE LINEAIREMENT (EFFET KERR OPTIQUE)</u> .....	125
I. <u>Principe des expériences : interférences en</u> <u>lumière polarisée</u> .....	128
II. <u>Montages expérimentaux</u> .....	131



1° - Montage utilisant un prisme biréfringent	131
2° - Montage utilisant un polariseur tournant	134
<u>III. Observation du dichroïsme et de la biréfringence</u>	
<u>induits par laser</u> .....	136
1° - Systèmes à deux niveaux .....	136
2° - Systèmes à trois niveaux .....	143
3° - Observation simultanée du dichroïsme et de la biréfringence ; relations de Kramers-Kronig .....	146
<u>CONCLUSION</u> .....	151
<u>BIBLIOGRAPHIE</u> .....	157



## INTRODUCTION

La spectroscopie optique à haute résolution traditionnelle utilise un dispositif interférentiel pour analyser la lumière complexe émise ou absorbée par les atomes ou les molécules. L'instrument d'analyse limite alors la résolution, soit pour des raisons fondamentales (limite théorique de résolution), soit pour des questions d'énergie lumineuse transmise (rapport signal sur bruit). Les performances des instruments, dans leur forme la plus élaborée (spectromètre Fabry-Perot de grande finesse, spectromètre à transformée de Fourier,...), sont cependant telles que, dans certains cas, c'est la largeur de raie de la source (largeur Doppler dans les vapeurs) qui limite la résolution effective.

Ces dernières années, parallèlement au perfectionnement de cette spectroscopie traditionnelle (extension de la spectrométrie de Fourier dans le domaine visible, augmentation de la résolution intrinsèque de la spectrométrie de Fourier dans le proche I.R.), s'est développé un nouveau type de spectroscopie lié à l'utilisation de sources monochromatiques accordables (lasers accordables) [1]. Dans ces méthodes de spectroscopie par rayonnement monochromatique accordable (S.R.M.A.), on observe la réponse du système atomique ou moléculaire à une radiation source dont on fait varier continûment la fréquence dans le domaine étudié. Dans ce cas, la résolution ultime de la méthode est déterminée par la largeur spectrale de la source et également par la largeur

spectrale de la réponse elle-même (élargissement homogène et inhomogène du système dans les conditions d'étude).

Pour pouvoir utiliser ce type de spectroscopie il faut d'abord disposer d'une source accordable dans le domaine spectral intéressant, il faut ensuite obtenir de cette source une largeur spectrale d'émission aussi faible que possible tout en conservant une puissance lumineuse émise convenable et des possibilités de balayage sur un grand domaine de fréquence. Pour la spectroscopie atomique dans le domaine optique, de nombreux types de lasers répondant (plus ou moins complètement) aux exigences précédentes sont disponibles actuellement (lasers à gaz, lasers à semi-conducteurs, lasers à centres colorés, lasers à colorant ...). Les largeurs spectrales obtenues avec ces lasers (de l'ordre de quelques MHz) sont telles qu'il est nécessaire, pour bénéficier de la résolution maximale possible, d'éliminer l'élargissement Doppler pour n'être plus limité (au moins dans les spectres atomiques) que par les largeurs homogènes des transitions.

Rappelons brièvement l'origine de l'élargissement Doppler : si un atome de vitesse  $\vec{v}$  émet une radiation de fréquence  $\omega_0$  et de vecteur d'onde  $\vec{K}$ , un observateur situé dans le référentiel du laboratoire voit une radiation dont la fréquence est  $\omega = \omega_0 + \vec{K} \cdot \vec{v} = \omega_0 + K v_z$  ( $K = \frac{\omega_0}{c}$ ); dans un gaz la projection  $v_z$  de la vitesse atomique sur la direction de propagation du rayonnement a une distribution maxwellienne de sorte que, en l'absence de toute autre cause d'élargissement, le profil spectral de la raie émise serait gaussien avec une "largeur Doppler"

$$\delta\omega_D \approx 0,7 \cdot 10^{-6} \sqrt{\frac{T}{M}} \omega_0 \quad (M : \text{masse moléculaire}, T : \text{température absolue}).$$

On a imaginé différentes méthodes spectroscopiques pour éliminer cet élargissement Doppler [2]. La plus ancienne de ces méthodes utilise un jet atomique (ou moléculaire) [3]; elle a permis des études de spectroscopie optique en absorption et en émission bien avant le développement des lasers accordables. Dans les jets atomiques on réalise une



sélection matérielle des atomes ayant une direction de vitesse donnée de sorte que, en observation transversale, l'effet Doppler n'intervient pas ( $v_z = 0$  pour tous les atomes). On peut également obtenir cette sélection des vitesses atomiques dans une vapeur par interaction non-linéaire résonnante avec une radiation monochromatique [4] comme c'est le cas dans la méthode d'absorption saturée et dans les différentes méthodes utilisant des systèmes à trois niveaux (affinement des raies de fluorescence, double résonance optique,...). On peut enfin éliminer l'effet Doppler dans une vapeur en utilisant une transition multiphotonique et en annulant la somme des vecteurs d'ondes des différents photons impliqués ; on obtient ainsi, pour tous les atomes, une élimination complète de l'effet Doppler du premier ordre [5].

Nous avons utilisé des méthodes appartenant aux deux premières catégories de spectroscopie optique sans effet Doppler et nous les avons appliquées à la mesure de structures (hyperfines et isotopiques) dans les gaz rares et à l'étude de certains aspects de l'interaction entre les atomes et un rayonnement monochromatique intense et polarisé. Dans une première partie (Chapitre A), nous décrivons les méthodes utilisant un jet de gaz rare excité et permettant l'étude de structures de raies partant soit d'un niveau métastable, soit d'un niveau résonnant. La structure hyperfine de plusieurs niveaux du néon ainsi que des déplacements isotopiques dans le krypton ont pu être mesurés ainsi. Dans le second chapitre (Chapitre B) nous étudions l'affinement de raies d'absorption d'une vapeur dans des systèmes à trois niveaux du néon soumis à l'action de deux lasers monochromatiques quasi-résonnants. La technique décrite est employée pour mesurer des structures hyperfines de  $^{21}\text{Ne}$  et des déplacements isotopiques  $^{22}\text{Ne} - ^{20}\text{Ne}$ . L'utilisation d'un rayonnement intense pour l'une des transitions permet de mettre en évidence le dédoublement des niveaux atomiques sous l'action de ce champ (effet Stark dynamique) (Chapitre C). La manière très particulière dont se manifeste cet effet dans une expérience à trois niveaux en phase vapeur est discutée tant du point de vue théorique que pour ses conséquences expérimentales. Enfin nous mettons en évidence

expérimentalement (Chapitre D) l'anisotropie provoquée dans la vapeur atomique par un rayonnement monochromatique quasi-résonnant polarisé linéairement, anisotropie observée tant sur le coefficient d'absorption (dichroïsme) que sur l'indice de réfraction (biréfringence).

CHAPITRE A

---

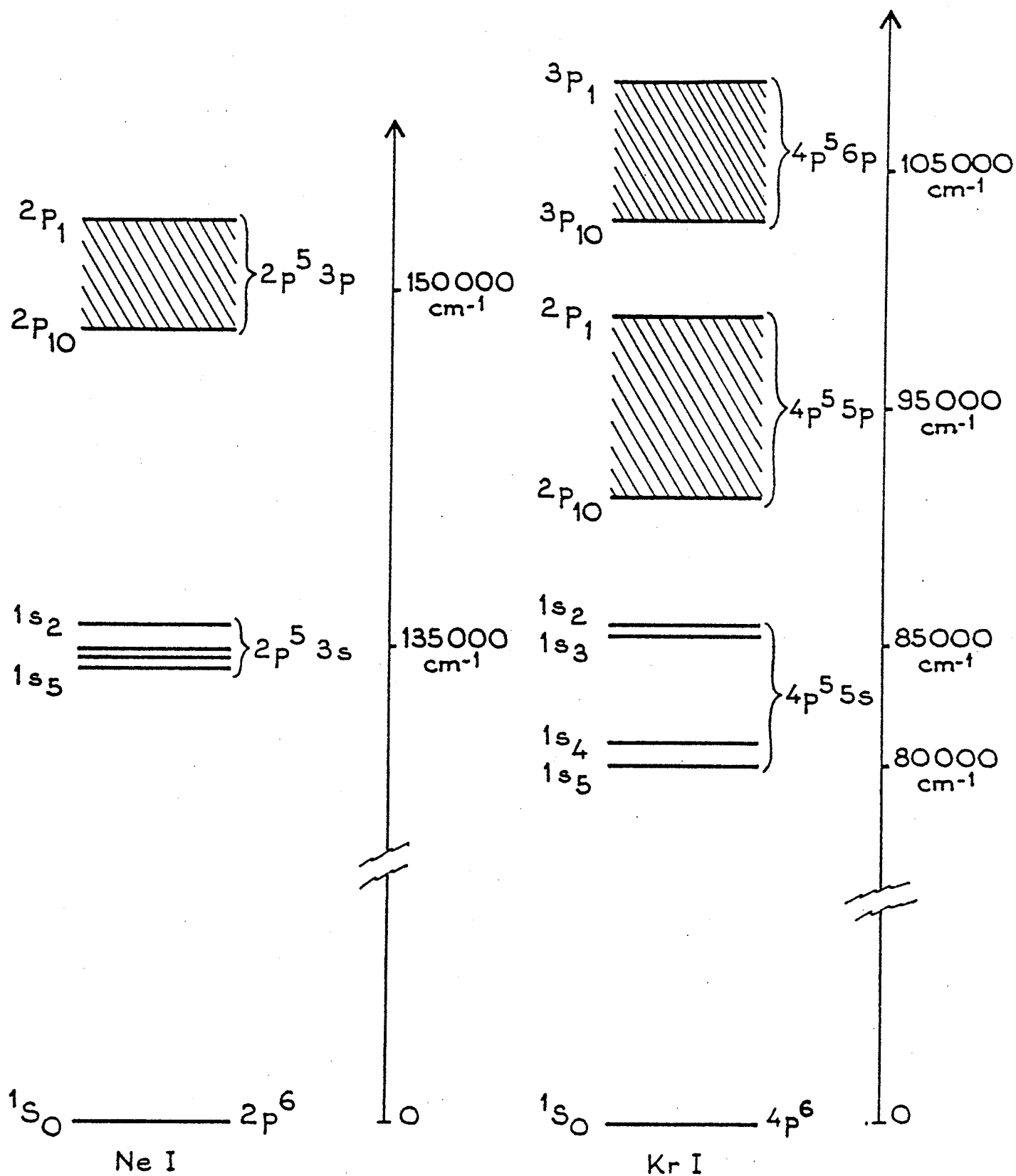


Figure 1 : Diagrammes des niveaux d'énergie les plus bas de Ne I et de Kr I (pour le krypton les niveaux des configurations 4p<sup>5</sup>4d (96772 - 104888 cm<sup>-1</sup>) et 4p<sup>5</sup>6s (99627 - 105147 cm<sup>-1</sup>) ne sont pas représentés). Les niveaux 1s<sub>5</sub> (J=2) et 1s<sub>3</sub> (J=0) sont métastables.

SPECTROSCOPIE LASER AVEC UN JET DE GAZ RARE EXCITE.

L'utilisation de jets atomiques en spectroscopie optique est bien antérieure à l'apparition des lasers accordables ; des spectres d'absorption [6, 7] et d'émission [8-11] ont été obtenus avec des jets atomiques et ont permis des mesures de structures hyperfines et de déplacements isotopiques par spectroscopie interférentielle conventionnelle à haute résolution [12, 13] . Lorsque la spectroscopie par rayonnement monochromatique accordable est devenue possible, à la suite de l'apparition puis des progrès technologiques de nouveaux lasers, on a vu apparaître de nombreuses expériences utilisant des jets atomiques très collimatés (cf. [3] et les nombreuses références qui y sont indiquées). Nous pouvons rappeler ici que les performances des premiers lasers à colorant monofréquence ont été contrôlées en utilisant des jets atomiques de sodium.

La quasi-totalité de la spectroscopie laser avec les jets atomiques a été réalisée par absorption à partir du niveau fondamental, ce qui limite considérablement son domaine d'application. Pour atteindre des niveaux très excités, on peut envisager une excitation multiphotonique (avec ou sans niveaux intermédiaires réels) ou bien une excitation optique à partir d'un niveau métastable convenablement peuplé au préalable. Cette dernière approche est seule envisageable dans le cas des gaz rares où la première configuration excitée  $np^5(n+1)s$  , qui comporte

2 niveaux métastables (  $J=0$  et  $J=2$  ), est très éloignée en énergie du niveau fondamental (figure 1).

L'étude spectroscopique des gaz rares, entreprise initialement dans notre laboratoire en utilisant les raies laser infrarouges [14 - 17] , est motivée par l'existence de problèmes intéressants concernant la structure hyperfine et le déplacement isotopique de ces éléments. Pour le néon ( $^{21}\text{Ne}$ ) par exemple il n'existait, au moment où nous avons entrepris l'expérience avec le jet excité, que très peu de valeurs expérimentales de constantes A et B de structure hyperfine à confronter aux prévisions théoriques de S. Liberman basées sur des études paramétriques [15, 18]. Pour ce qui concerne le krypton, les mesures de déplacement isotopique présentent un grand intérêt en raison de la place des isotopes de cet élément par rapport au nombre magique de neutrons  $N=50$  [17, 19] ; aucune mesure précise antérieure n'existait pour les raies visibles quand nous avons obtenu les premières valeurs montrant l'existence d'un effet de volume pour la raie  $\lambda = 557 \text{ nm}$  [20]. Il existe de plus, aussi bien pour le néon que pour le krypton, des raies relativement intenses ayant pour niveau inférieur un des niveaux métastables et situées dans un domaine de longueur d'onde où les lasers à colorants continus fonctionnent bien. C'est dans ces conditions que nous avons pu mettre à profit les qualités du laser à colorant monofréquence mis au point par S. Liberman et J. Pinard [21] .

Nous ne discuterons pas ici les propriétés générales des jets atomiques ; on trouvera de précieuses indications à ce sujet dans les références [3] et [22]. Dans une première partie nous présenterons le principe des expériences de spectroscopie laser utilisant des jets atomiques excités pour l'étude de transitions partant d'un niveau métastable, mais aussi pour l'étude de transitions partant d'un niveau résonnant. Nous décrirons ensuite les différents éléments de notre montage expérimental et en particulier les différents procédés utilisés pour exciter le jet atomique. Nous exposerons enfin les résultats spectroscopiques obtenus pour le néon et pour le krypton.

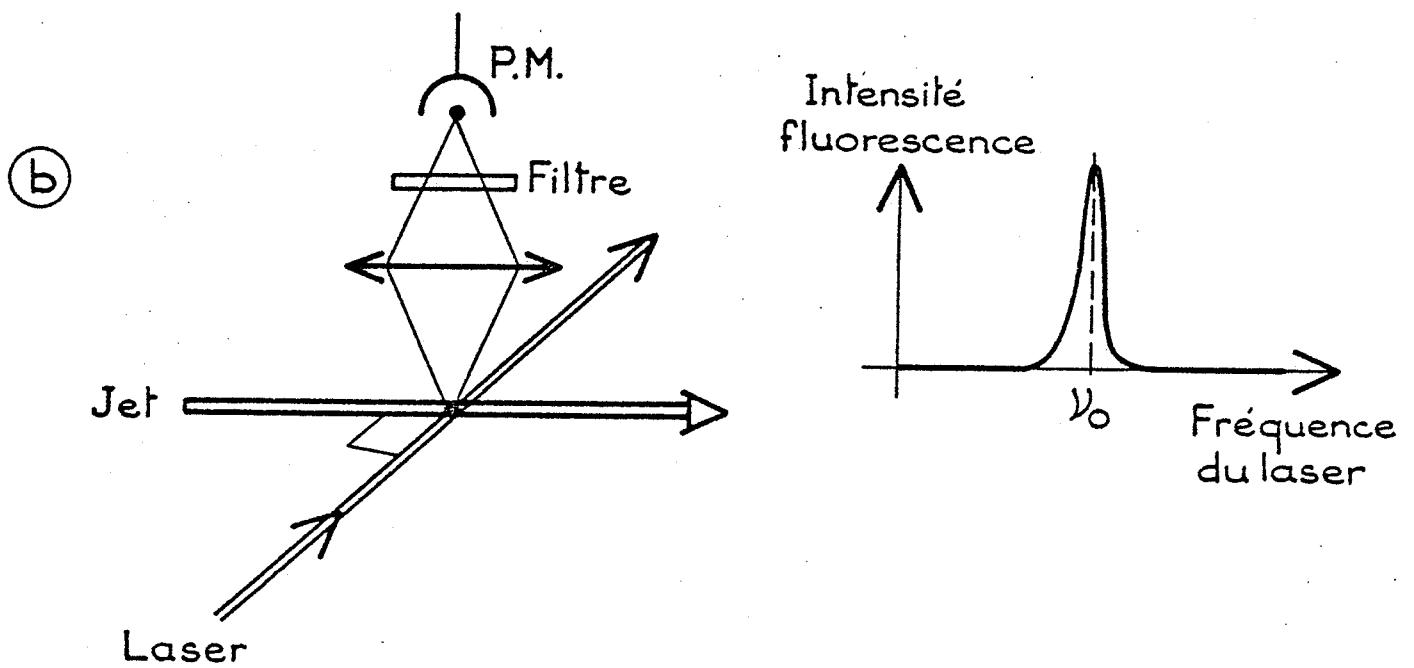
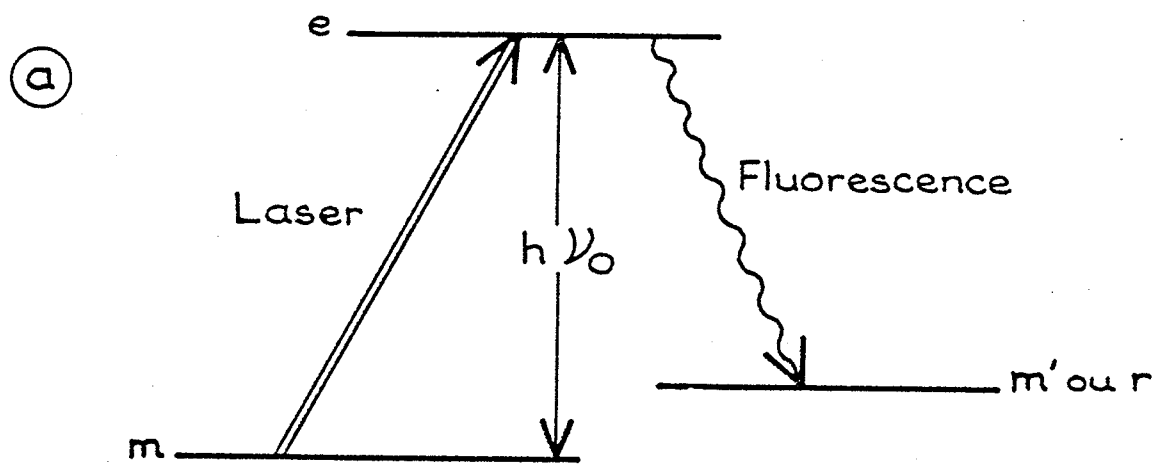
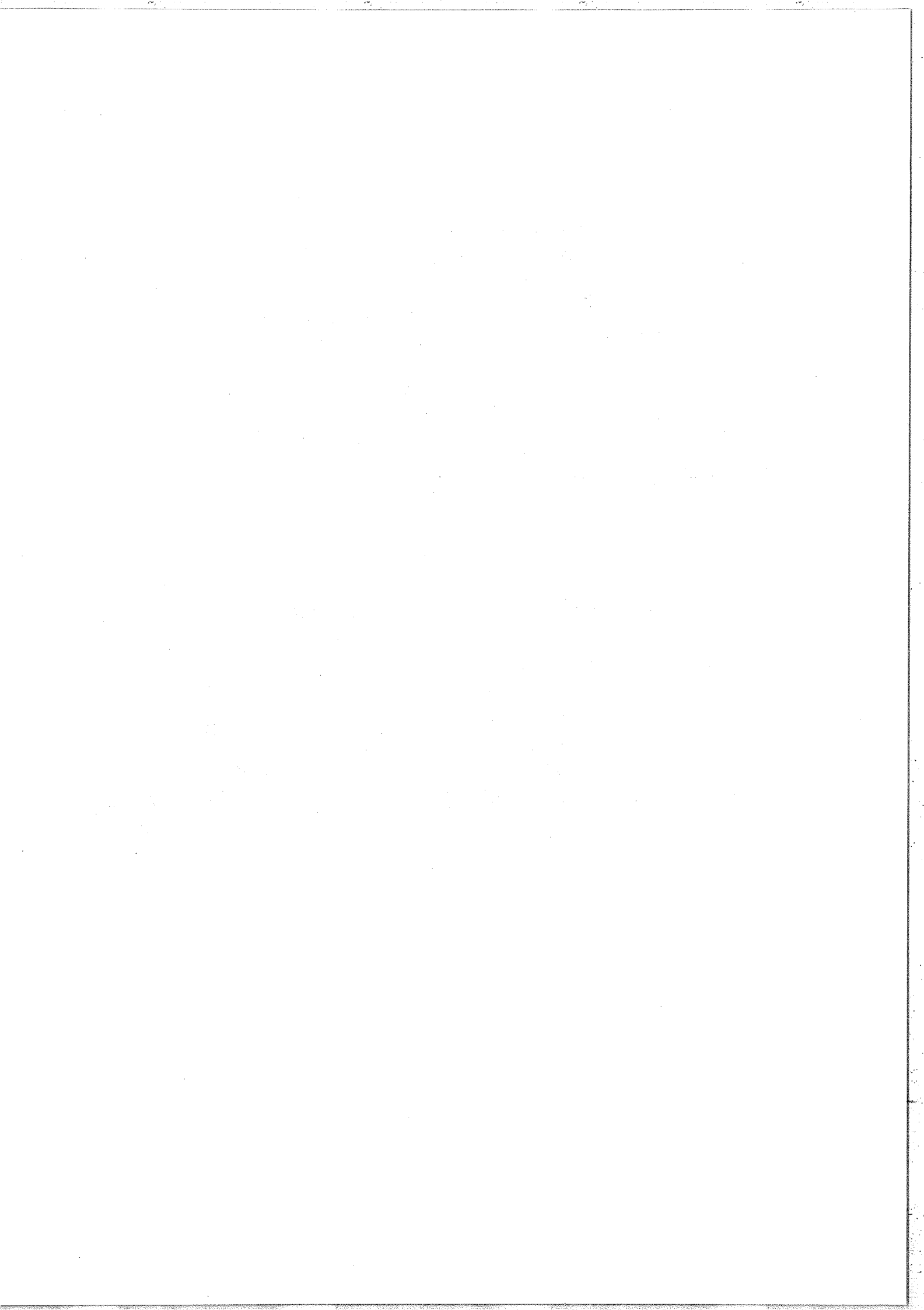


Figure 2 : Principe d'une expérience d'absorption à partir d'un niveau métastable avec détection par fluorescence avec un jet atomique.



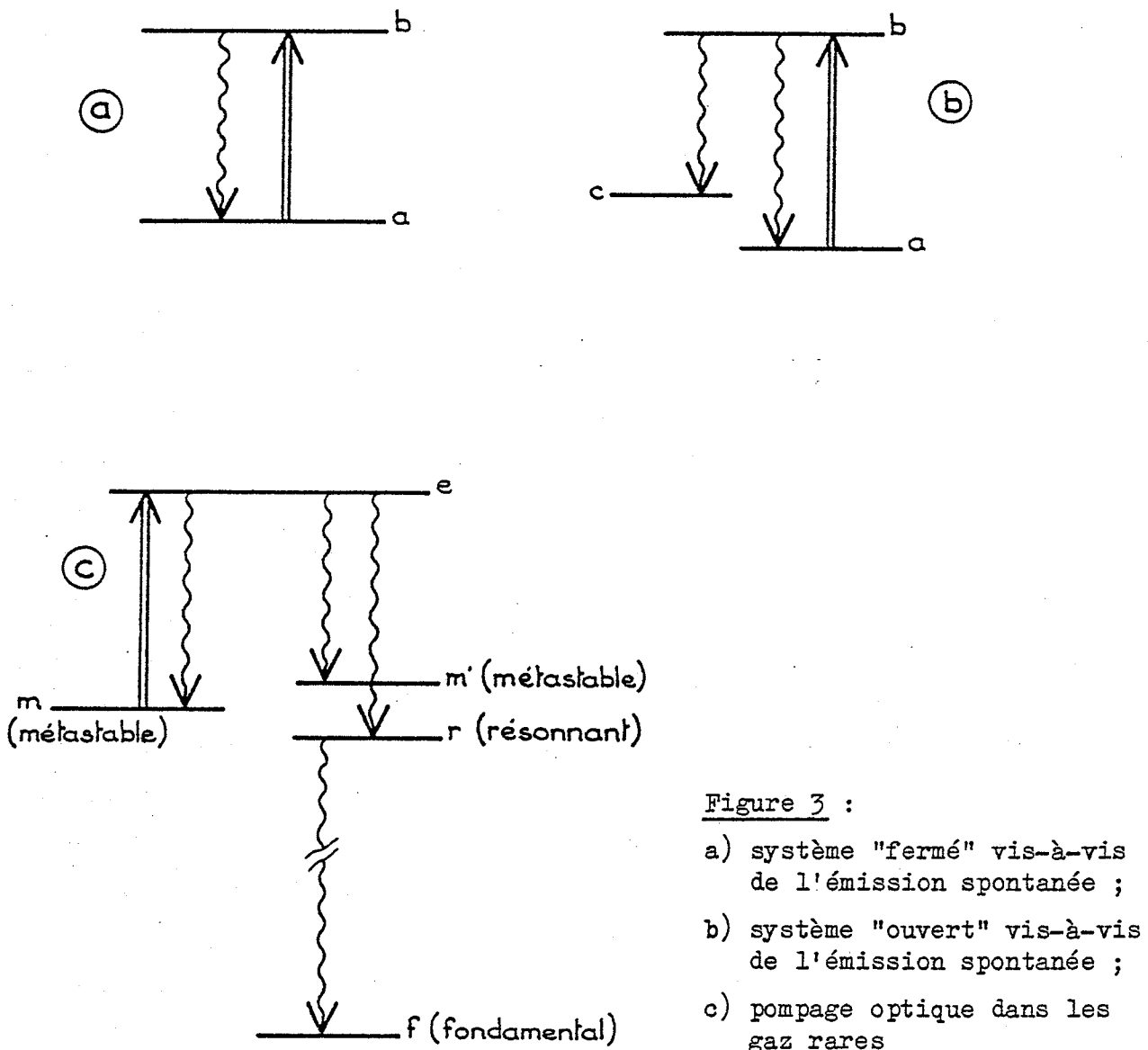


## I. Principe des expériences.

### 1° - Etude des transitions partant d'un niveau métastable.

Le principe d'une expérience de spectroscopie laser utilisant un jet atomique est le même que l'on parte d'un niveau fondamental ou d'un niveau métastable : il s'agit d'une expérience d'absorption dans laquelle on détecte dans la plupart des cas la population du niveau supérieur de la transition en fonction de la fréquence du laser. Le plus souvent les résonances optiques sont détectées en observant la fluorescence (figure 2) mais la photoionisation à partir du niveau excité [23] ou l'ionisation par un champ électrique statique (pour les états de Rydberg) [24] peuvent également être utilisés. D'autres méthodes ne conduisent pas à mesurer la population du niveau excité mais à détecter le transfert de quantité de mouvement [25] ou le changement d'état magnétique [26, 27] dans le processus d'absorption suivie de l'émission spontanée. Dans nos expériences sur le néon et le krypton, nous avons détecté la fluorescence correspondant à une désexcitation vers un des autres niveaux appartenant à la configuration  $np^5(n+1)s$  (figure 2a). Partant d'un niveau excité (métastable), nous pouvons observer la fluorescence à une longueur d'onde différente de la longueur d'onde laser, ce qui permet souvent de s'affranchir de la lumière laser diffusée.

Pour une puissance donnée du laser, le signal que l'on peut obtenir en détectant la lumière de fluorescence est beaucoup plus faible pour un système "ouvert" que pour un système "fermé" vis-à-vis de l'émission spontanée (figure 3a,b) [27]. Dans les gaz rares les systèmes rencontrés sont ouverts vis-à-vis de l'émission spontanée et donnent lieu à un pompage optique qui accumule les atomes dans l'autre niveau métastable ou dans le niveau fondamental via un niveau résonnant de  $np^5(n+1)s$  (figure 3c). Seule la transition  $1s_5 (J=2) \rightarrow 2p_9 (J=3)$  ( $\lambda = 6402 \text{ \AA}$ ) ne donne pas lieu à ce pompage optique car le niveau  $2p_9$  ne peut se



désexciter par émission spontanée que vers le seul niveau de  $J=2$  de la configuration  $np^5(n+1)s$  soit  $1s_5$ . Au pompage vers les niveaux de structure fine de  $np^5(n+1)s$  s'ajoute un pompage magnétique (accumulation des atomes dans certains sous niveaux Zeeman) et éventuellement un pompage hyperfin pour les isotopes ayant un spin nucléaire  $I \neq 0$  ( $^{21}\text{Ne}$ ,  $^{83}\text{Kr}$ ). Finalement, dans notre expérience d'absorption sur jet de gaz rare, chaque atome traversant le faisceau laser fournit un photon de fluorescence au plus et ceci même à très forte puissance laser.

## 2° Etude des transitions partant d'un niveau résonnant.

Dans les gaz rares, une expérience d'absorption du type décrit précédemment n'est pas réalisable pour les transitions partant de niveaux résonnants (niveaux de  $J=1$  de  $np^5(n+1)s$ ) car ceux-ci, contrairement aux niveaux métastables, ne restent pas peuplés dans le jet atomique (\*).

On peut envisager de peupler ce niveau résonnant par un pompage optique selon le processus suivant (figure 4) :

- i) à partir du niveau métastable  $m$  et en utilisant un premier laser (laser 1) on porte des atomes dans le niveau excité  $e$  ;
- ii) par désexcitation radiative, le niveau résonnant  $r$  est peuplé ; à partir de ce niveau on peut réaliser l'expérience d'absorption vers un niveau  $e'$  à l'aide d'un 2ème laser (laser 2).

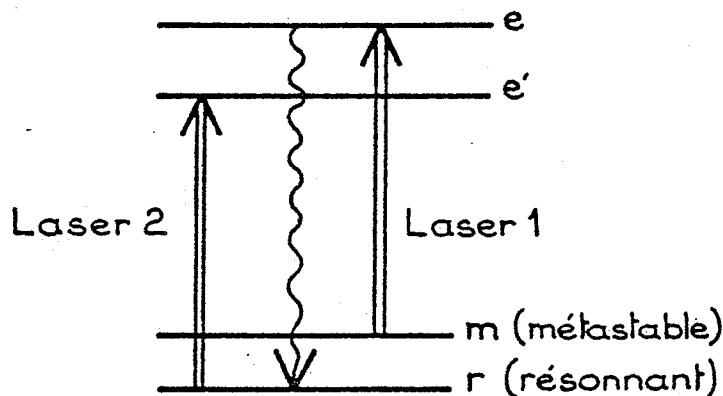


Figure 4 : Peuplement du niveau résonnant  $r$  par désexcitation radiative du niveau  $e$ .

(\*) Dans l'expérience où on excite le jet avec un canon à électrons ([28], §.III) on pourrait, en principe, faire l'expérience en éclairant le jet avec le faisceau laser dans la région où il croise le faisceau d'électrons. La population du niveau résonnant serait de toute façon très faible (à cause de la faible durée de vie du niveau) et, de plus, on serait fortement gêné par la lumière émise par le jet excité notamment à la longueur d'onde d'observation de la fluorescence induite par le laser.

Du fait des rapports de branchement souvent défavorables (notamment dans le krypton) et des faibles durées de vie des niveaux résonnants, on ne peut pas maintenir ainsi une population suffisante dans le niveau  $r$ . Mais, si le niveau résonnant  $r$  a une durée de vie suffisamment courte (niveau  $1s_4$  du krypton par exemple), la désexcitation radiative vers le niveau fondamental dépeuplera pratiquement le niveau. On obtiendra ainsi, en effectuant le pompage  $m \rightarrow e$  avec le laser 1, une inversion de population entre les niveaux  $e$  et  $r$ . Cette inversion de population nous permettra d'étudier la transition  $r \rightarrow e$  à l'aide du laser 2 que l'on amène en résonance avec cette transition (figure 5). L'émission induite, produite par le laser 2, diminue la population du

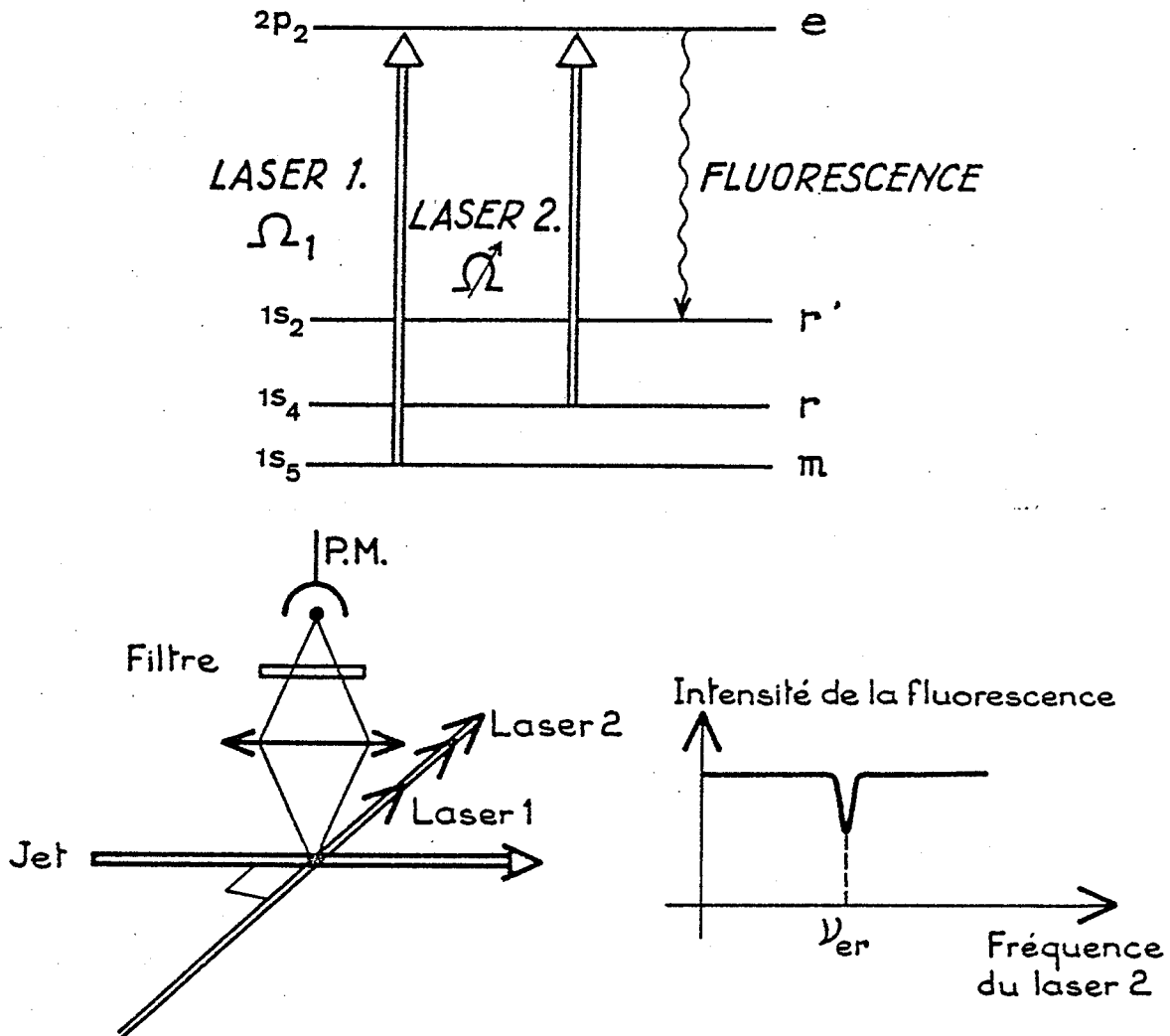


Figure 5 : Principe d'une expérience utilisant l'émission stimulée pour étudier une transition partant d'un niveau résonnant dans un jet atomique.

niveau  $e$  ; on peut détecter cette diminution de population en observant la lumière de fluorescence émise à partir du niveau  $e$  . En balayant la fréquence du laser 2, une résonance négative centrée sur la fréquence optique  $\Omega_{er}$  devrait pouvoir être enregistrée.

Par comparaison avec les expériences habituelles utilisant l'absorption d'un laser par un jet atomique (cf. §. précédent), on peut considérer que nous venons de décrire le principe d'une expérience utilisant l'émission stimulée dans un jet atomique.

Dans le but de déterminer les caractéristiques des résonances que l'on peut espérer observer dans une telle expérience, nous présentons maintenant un calcul théorique de ces résonances obtenu dans un modèle très simplifié [29]. Comme nous détectons la lumière de fluorescence émise par les atomes à partir du niveau  $e$  , la quantité à calculer est la population  $N_e$  du niveau supérieur. On peut considérer notre système comme un ensemble d'atomes à trois niveaux soumis à l'action de deux radiations monochromatiques quasi-résonnantes respectivement avec les transitions  $m-e$  et  $r-e$  (figure 5). Ces atomes sont contenus dans un volume  $\tau$  , intersection du jet atomique et des deux faisceaux laser. Si les intensités et les fréquences des deux lasers sont fixées, il existe un régime permanent pour lequel les populations des niveaux  $m$  ,  $r$  et  $e$  dans le volume  $\tau$  restent constantes. Si on tient compte du temps d'interaction fini entre les atomes et les deux faisceaux laser, il est assez difficile de calculer les valeurs en régime permanent des populations et des cohérences du système à trois niveaux. Il faut pour cela écrire les équations d'évolution de la matrice densité du système à trois niveaux (cf. Chapitre B) puis les intégrer par rapport au temps ; le signal de fluorescence est alors proportionnel à l'intégrale pendant le temps de traversée du faisceau laser de la population  $N_e$  du niveau excité [27]. L'ensemble de ce calcul serait assez lourd et, dans la mesure où nous ne recherchons ici qu'une évaluation approchée de l'intensité et de la largeur du pic de résonance, nous nous contenterons d'un modèle beaucoup plus simple.

Nous allons considérer un système à 2 niveaux (niveaux  $e$  et  $r$ ) soumis à une radiation monochromatique quasi-résonnante (laser 2), le niveau  $e$  étant peuplé, avec un taux constant  $\lambda$ , par absorption à partir du niveau métastable (figure 6).

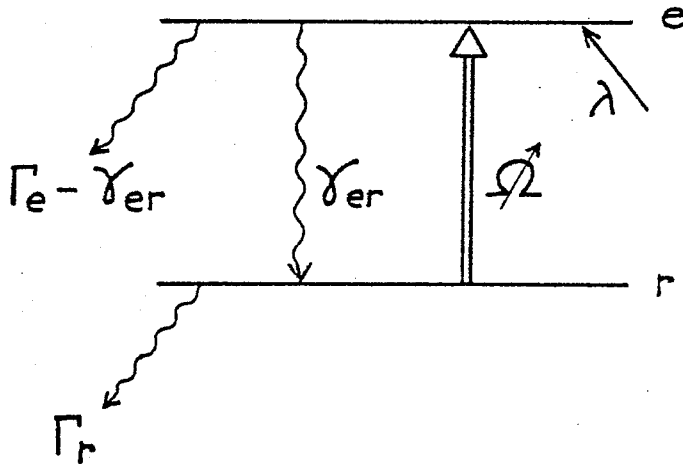


Figure 6 :

Caractéristiques du modèle à deux niveaux utilisé pour le calcul du §.A.I.2°.

De plus, nous considérons que les niveaux  $e$  et  $r$  ne sont pas dégénérés. Les atomes sont soumis au champ électrique de l'onde monochromatique de fréquence  $\Omega$  :  $\underline{E}(t) = \underline{\epsilon} E_0 \cos \Omega t$  (\*) .

$$V = \frac{-e E_0}{2\pi} \langle e | \underline{\epsilon} \cdot \underline{r} | r \rangle$$
 et on suppose de  $V$  est réel ;  $V$  est proportionnel à l'élément de matrice dipolaire entre  $e$  et  $r$  et caractérise la force du couplage entre l'atome et le champ électromagnétique. Pour une transition dipolaire électrique et en faisant l'approximation du champ tournant, les équations de Bloch optiques s'écrivent :

$$\begin{aligned} \dot{N}_e &= -\Gamma_e N_e - 2b V + \lambda \\ \dot{N}_r &= -\Gamma_r N_r + \gamma_{er} N_e + 2b V \\ \dot{a} &= -\frac{\Gamma_e + \Gamma_r}{2} a - \Delta b \\ \dot{b} &= \Delta a - \frac{\Gamma_e + \Gamma_r}{2} b + V(N_e - N_r) \end{aligned} \quad (1)$$

(\*) Dans ce calcul, nous utilisons des notations similaires à celles de Feneuille, Schweighofer et Oliver [30].

Dans ces équations  $N_e$ ,  $N_r$ ,  $a$  et  $b$  sont des quantités réelles reliées aux éléments de matrice  $\rho_{ij}$  de l'opérateur densité de la manière suivante :

$$N_e = \rho_{ee} \quad ; \quad N_r = \rho_{rr} \quad ; \quad (a + ib) = \rho_{re} e^{i\Omega t}$$

$\Gamma_e$  et  $\Gamma_r$  sont les taux de relaxation respectifs des niveaux  $e$  et  $r$  ;  $\gamma_{er}$  est le taux d'émission spontanée pour la transition  $e-r$  ;  $\Delta = \Omega - \bar{\omega}_{er}$  est le désaccord en fréquence du laser par rapport à la résonance optique. En résolvant le système (1) pour le régime stationnaire on obtient :

$$N_e = \lambda \left[ \Gamma_e + \frac{4V^2}{\Gamma_e + \Gamma_r} \times \frac{(1 - \gamma_{er}/\Gamma_r)}{1 + 4\Delta^2/(\Gamma_e + \Gamma_r)^2 + 4V^2/\Gamma_r(\Gamma_e + \Gamma_r)} \right]^{-1} \quad (2)$$

Nous utiliserons cette expression pour calculer la largeur et l'amplitude de la résonance dans le cas du krypton (A.III.3°) et nous comparerons alors les valeurs obtenues aux valeurs expérimentales.

## II. Dispositif expérimental.

### 1° - Le jet gazeux.

Bien qu'ils soient généralement plus difficiles à mettre en oeuvre que les jets d'éléments facilement condensables, un certain nombre de jets d'éléments gazeux ont été réalisés précédemment pour fournir des spectres d'émission à raies très fines [9-11, 31, 32]. Le jet atomique que nous avons utilisé a été construit il y a quelques années dans notre laboratoire par R. W. Stanley sur le modèle de celui de l'Université Purdue (Etats-Unis) [10, 11].

L'enceinte à vide de l'appareil est divisée par une cloison en deux chambres pompées séparément par deux pompes à diffusion d'huile (figure 7). Le gaz est introduit dans la première de ces chambres par un tube métallique (le "four") qui porte à son extrémité un collimateur multicanal [10, 11, 33, 34] ; ce collimateur joue le rôle de première fente collimatrice pour le jet atomique. La majeure partie du gaz qui pénètre dans cette première chambre est immédiatement pompée grâce à la pompe à diffusion à grand débit. Le reste des atomes parvient dans la deuxième chambre de l'appareil à travers une fente percée dans la cloison, formant ainsi le jet atomique. Grâce à ce dispositif, une très faible partie du gaz injecté dans le "four" entre dans la deuxième chambre où une pression très faible (environ  $5 \cdot 10^{-7}$  torr) peut ainsi être maintenue. Dans ces conditions, la densité du gaz résiduel dans la deuxième chambre est négligeable devant la densité du jet et les raies fines données par le jet n'apparaissent pas superposées à des raies plus larges que donnerait ce gaz résiduel.

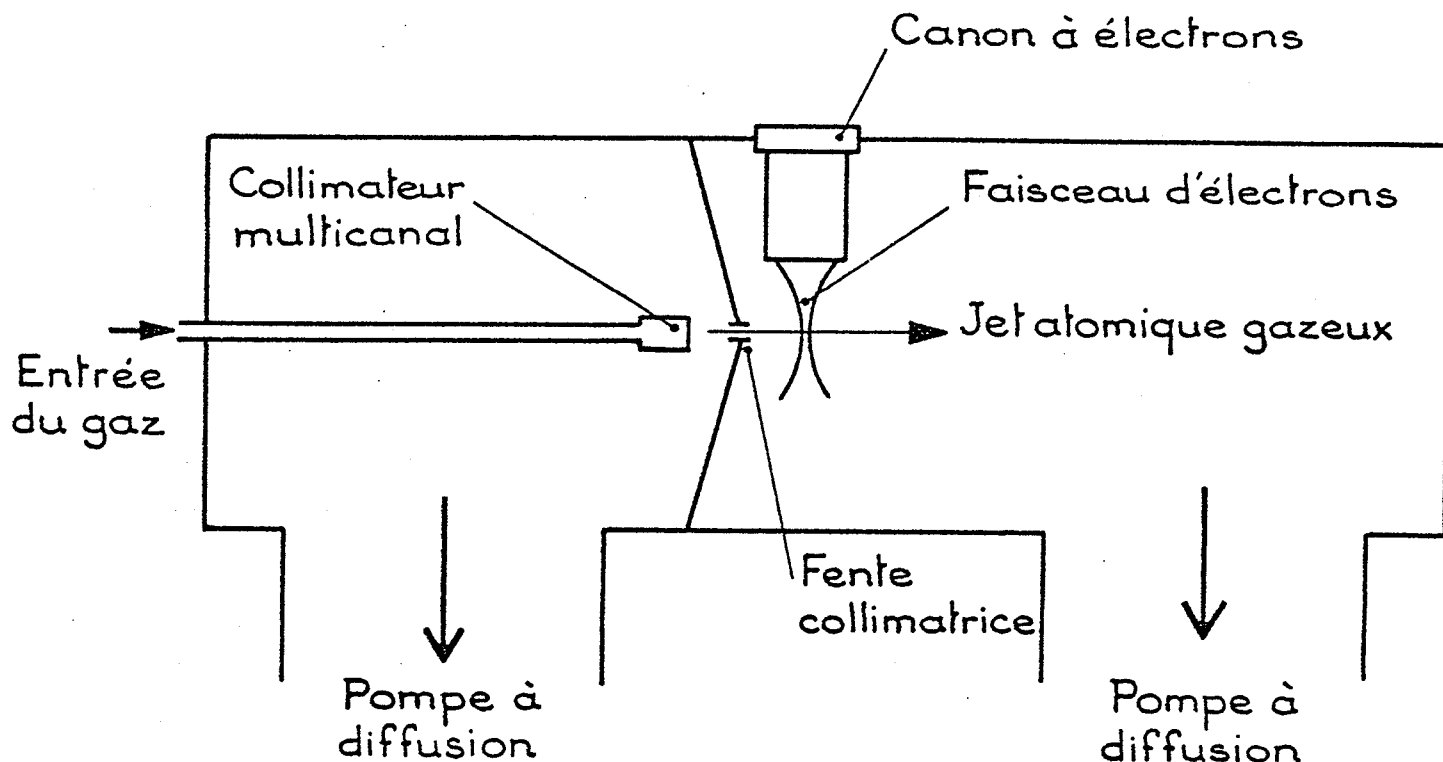


Figure 7 : Schéma du jet atomique pour substances gazeuses.



Dans nos expériences sur le néon, nous avons utilisé des échantillons enrichis en isotope rare ( $^{21}\text{Ne}$ ) ; il faut alors recycler le gaz pour éviter une trop grande consommation de néon isotopique. Pour cela, on utilise une pompe primaire rotative qui permet de faire circuler le gaz et on introduit dans le circuit de pompage des pièges à azote liquide et un piège chimique (fil de titane porté à haute température) destinés à retenir le plus possible d'impuretés lorsque l'appareil fonctionne en circuit fermé (figure 8). Quand on travaille avec un mélange isotopique naturel, le gaz est simplement évacué dans l'atmosphère par une pompe primaire rotative ordinaire.

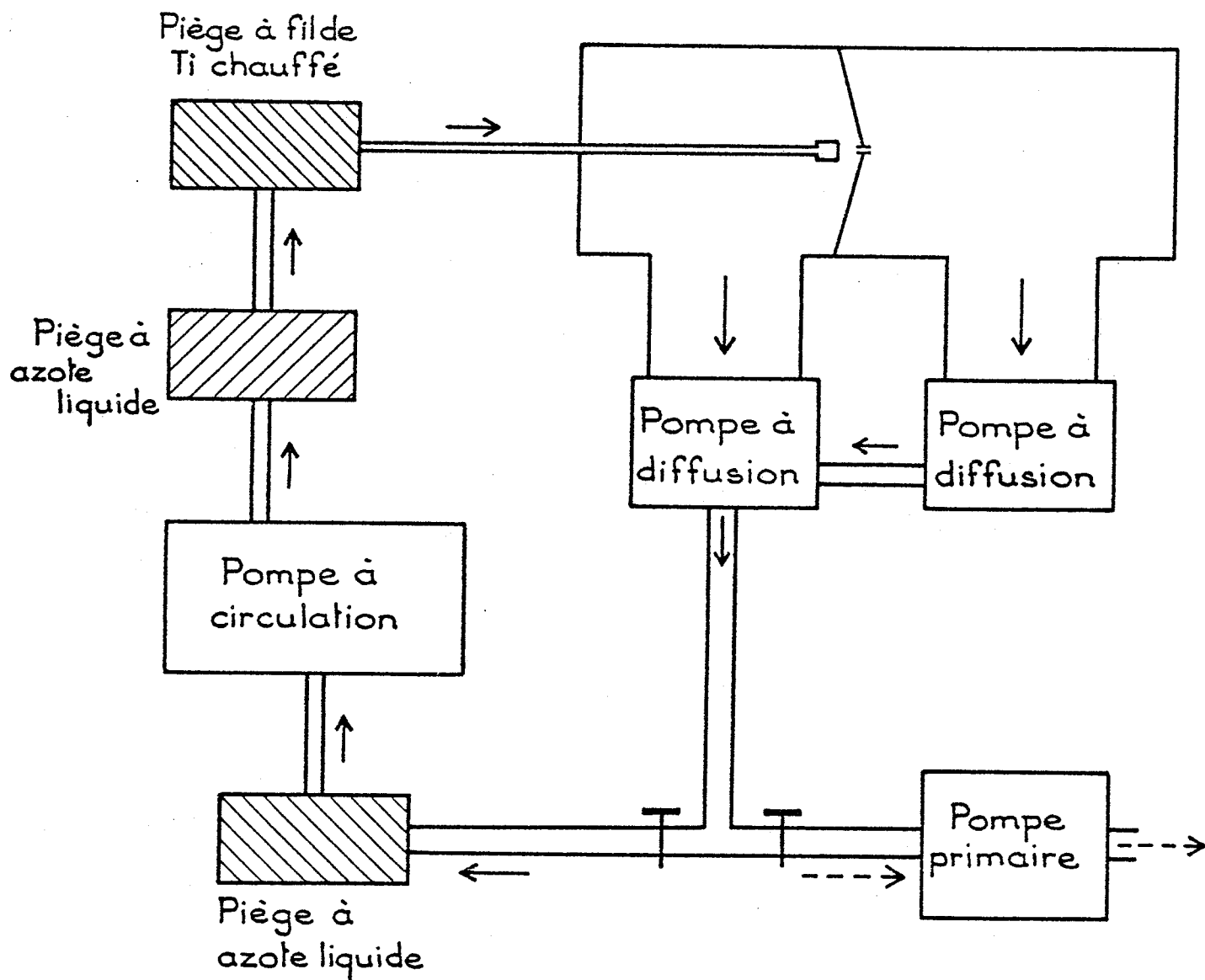


Figure 8 : Schéma du dispositif utilisé pour recycler les mélanges enrichis en isotopes rares.

2° - L'excitation du jet.

Partant du dispositif original destiné à produire des spectres d'émission, nous avons tout d'abord excité le jet par bombardement électronique. Cette excitation a alors lieu immédiatement après la fente percée dans la cloison séparant les deux chambres de l'enceinte à vide (figure 7). On éclaire le jet atomique avec le laser quelques millimètres après la zone d'interaction avec le jet d'électrons. Le canon à électrons utilisé est du type Pierce [10, 11, 35] avec focalisation électrostatique ; il est représenté sur la figure 9. Dans un

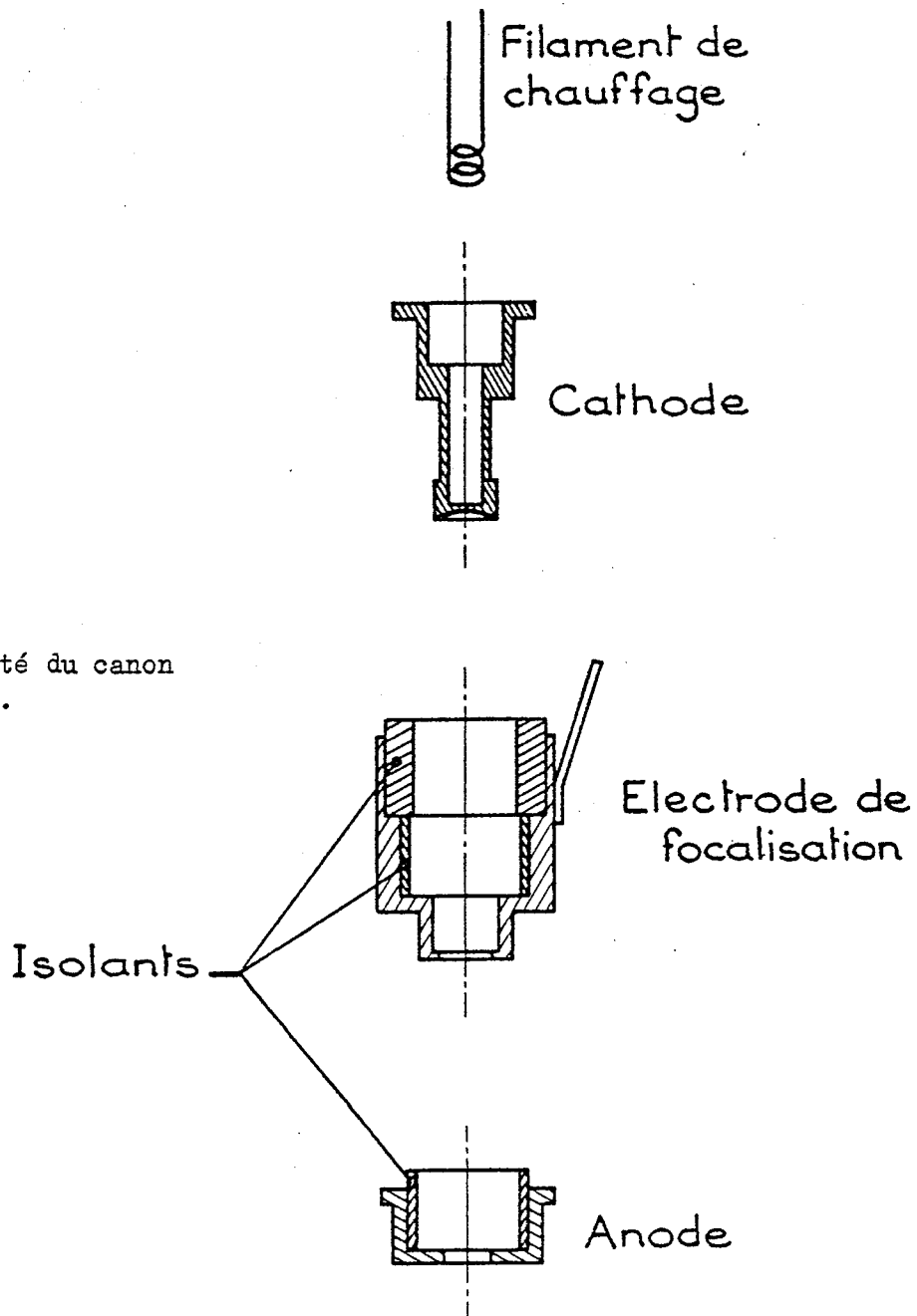


Figure 9 :

Schéma éclaté du canon à électrons.

premier temps, nous avons fabriqué nous-mêmes la couche émissive de la cathode à partir d'un mélange de carbonates d'alcalino-terreux, mais devant les résultats assez aléatoires obtenus pour le courant d'émission et la focalisation du jet d'électrons, nous avons ensuite fait fabriquer des couches émissives directement implantées dans le métal de la cathode (aluminate de baryum dans du tungstène "poreux") par un fabricant de tubes électroniques. Nous avons ainsi pu obtenir des courants de 30 mA environ sous une tension de 600 V et avec un diamètre du jet d'électrons inférieur à 1 mm dans la zone d'interaction avec le jet atomique. Cette tension d'accélération de 600 V est très supérieure à ce qui est nécessaire pour exciter les atomes mais est nécessaire, avec notre type de canon, pour obtenir une bonne focalisation du jet d'électrons.

Ce dispositif de fabrication in situ des métastables, bien qu'il présente des inconvénients (lumière parasite, efficacité assez réduite, destruction partielle de la collimation du jet, encombrement obligeant à détecter la fluorescence dans la direction du laser, ...), nous a permis d'étudier la structure hyperfine de quelques raies favorables dans le néon [28]. Pour étudier des cas plus difficiles, nous avons été amenés à modifier le dispositif de production des atomes métastables pour le rendre à la fois plus efficace et plus commode.

La production d'atomes métastables par décharge électrique à l'intérieur du "four" nous a semblé éviter au mieux les divers inconvénients évoqués ci-dessus. Le premier type de décharge que nous ayons essayé est une décharge à cathode creuse refroidie à l'azote liquide [20]. Au fond de cette cathode, une fente (0,3 mm de large, 5 mm de haut) permet aux atomes de s'échapper du "four", une partie d'entre eux étant dans un niveau métastable ; une deuxième fente de mêmes dimensions que la première et percée dans la cloison séparant les deux chambres de l'enceinte à vide, permet de collimater correctement le jet atomique. Ce dispositif nous a permis d'obtenir sur le krypton une densité suffisante d'atomes métastables et une partie de nos mesures (cf. §.A.III.2°) a été

effectuée avec le "four" à cathode creuse. Toutefois, la largeur de raie enregistrée dans ce cas n'a pas pu être réduite au-dessous de  $1,2\text{mK}$  ( $1\text{mK} = 10^{-3}\text{cm}^{-1}$ ), sans doute parce que la pression minimale nécessaire à un fonctionnement stable de la décharge (de l'ordre de 2 torr) était trop élevée pour permettre une formation convenable du jet atomique. Nous avons donc été conduits à utiliser une décharge sans électrode

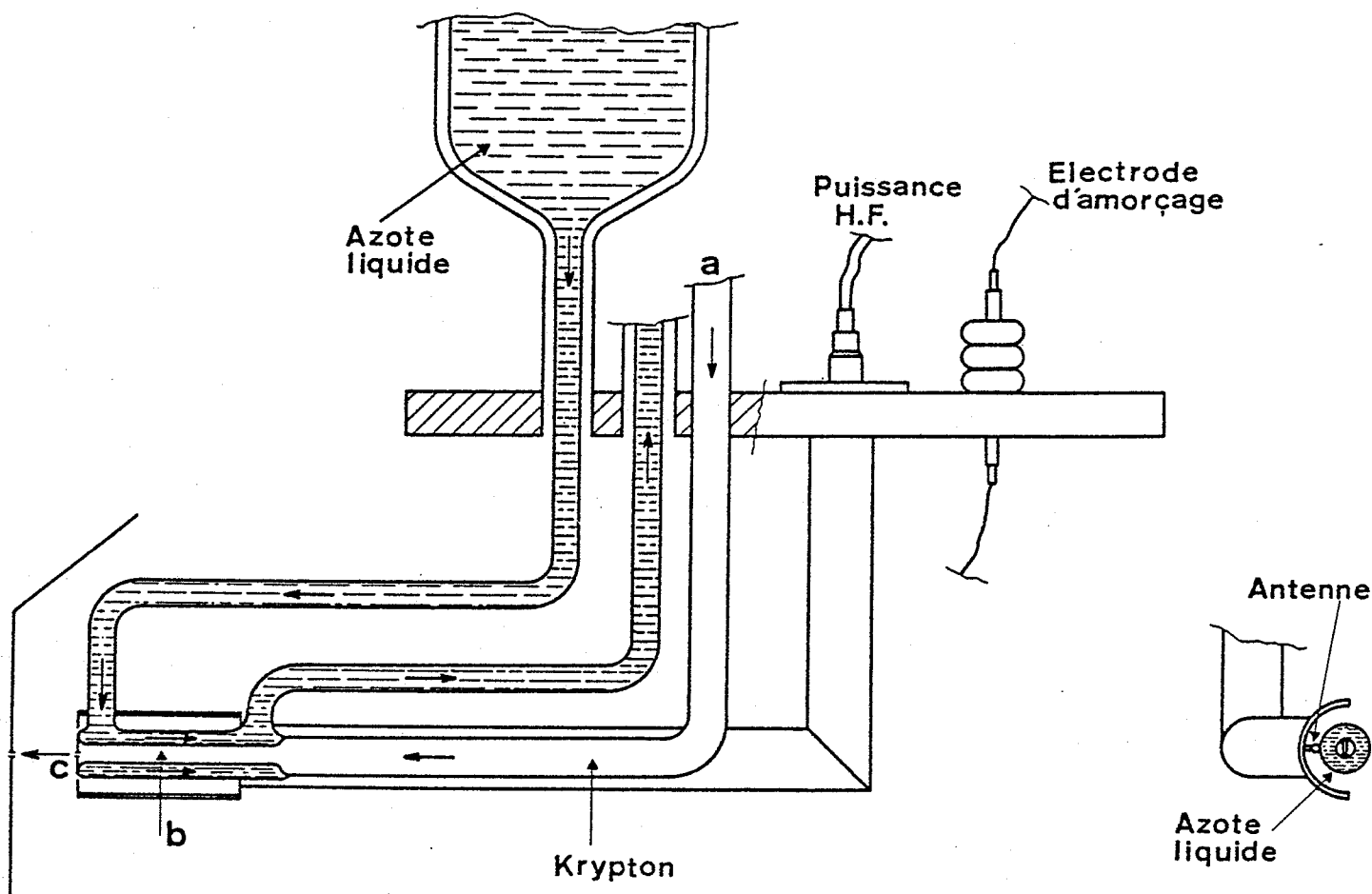


Figure 10 : Schéma du "four" à décharge sans électrodes.

Le gaz (krypton) est introduit en a ; une décharge, produite dans la zone b par un champ de haute fréquence permet de peupler les niveaux excités. Parmi les atomes sortant du four à travers la fente fine c une certaine proportion se trouve ainsi sur un niveau métastable ( $1s_5$  ou  $1s_3$ ). La fente c et une deuxième fente de mêmes dimensions définissent le jet atomique. Le refroidissement à l'azote liquide améliore la densité d'atomes métastables et diminue la largeur Doppler résiduelle.

excitée en haute fréquence (2450 MHz). Le tube à décharge est refroidi à l'azote liquide (figure 10) et son fonctionnement est extrêmement stable à des pressions aussi basses que 0,01 à 0,02 torr. La densité d'atomes métastables est également très satisfaisante et varie d'ailleurs assez peu lorsqu'on fait varier la pression du gaz dans le "four". Quant à la largeur de raie enregistrée, elle est de 0,7 mK dans le cas du krypton (transition  $1s_5 - 2p_2$ , voir les figures du §.A.III.2°), ce qui correspond bien à la valeur qu'on peut attendre, compte tenu de la largeur Doppler résiduelle 0,5 mK (pour une collimation de 30 et une température (\*) du gaz dans le four de 160 K), de la largeur naturelle de la transition 0,2 mK [36] et des fluctuations de fréquence du laser évaluées à 0,5 mK environ.

### 3° - La détection des résonances.

Nous observons l'intensité de la lumière de fluorescence émise à partir du niveau excité  $e$  de la transition étudiée (figure 2) en fonction de la fréquence du laser. On peut, en principe, recueillir la lumière de fluorescence émise dans tout l'espace et correspondant à une désexcitation radiative vers n'importe lequel des niveaux moins excités que  $e$ . En fait, l'angle solide utile est limité pour des considérations pratiques (encombrement géométrique des différents éléments du montage, dimension de la lentille qui collecte la lumière de fluorescence,...) et, comme nous l'avons indiqué précédemment, on s'affranchit plus facilement de la lumière laser diffusée en n'observant qu'une partie des raies de fluorescence (figure 2).

La disposition géométrique du dispositif de détection est sensiblement différente selon que le jet est excité par bombardement électronique

---

(\*) La température dans le four a été évaluée au cours de l'expérience décrite au §.A.III.3° .

(expérience sur le néon) ou par décharge dans le "four" (expériences sur le krypton).

a) Jet excité par bombardement électronique.

Dans ce cas, l'encombrement des différentes parties du canon à électrons et la lumière parasite émise sont tels que l'on est pratiquement obligé de détecter la fluorescence dans la direction du laser (figure 11). La majeure partie de la lumière laser est alors arrêtée par un écran et par un filtre interférentiel ( $\Delta\lambda \approx 50$  à  $100 \text{ \AA}$ , transmission  $\mathcal{T} \approx 0,30$  à  $0,50$  selon le cas). Dans le cas du néon, les longueurs d'onde du laser et de la lumière de fluorescence utilisée pour la détection ne sont pas toujours suffisamment éloignées (cf. III.1°) pour que le filtre interférentiel élimine la totalité de la lumière laser diffusée. On est également très gêné par la fluorescence de la cellule à colorant dont on forme plus ou moins l'image sur le trou du PM ; ceci nous a obligé à faire passer le laser, avant de le focaliser sur le jet, à travers un monochromateur de faible résolution. Néanmoins, l'essentiel de la lumière parasite provient du jet lui-même dans la région excitée par le bombardement électronique et de l'émission thermique du canon à électrons dont la couche émissive est fortement chauffée.

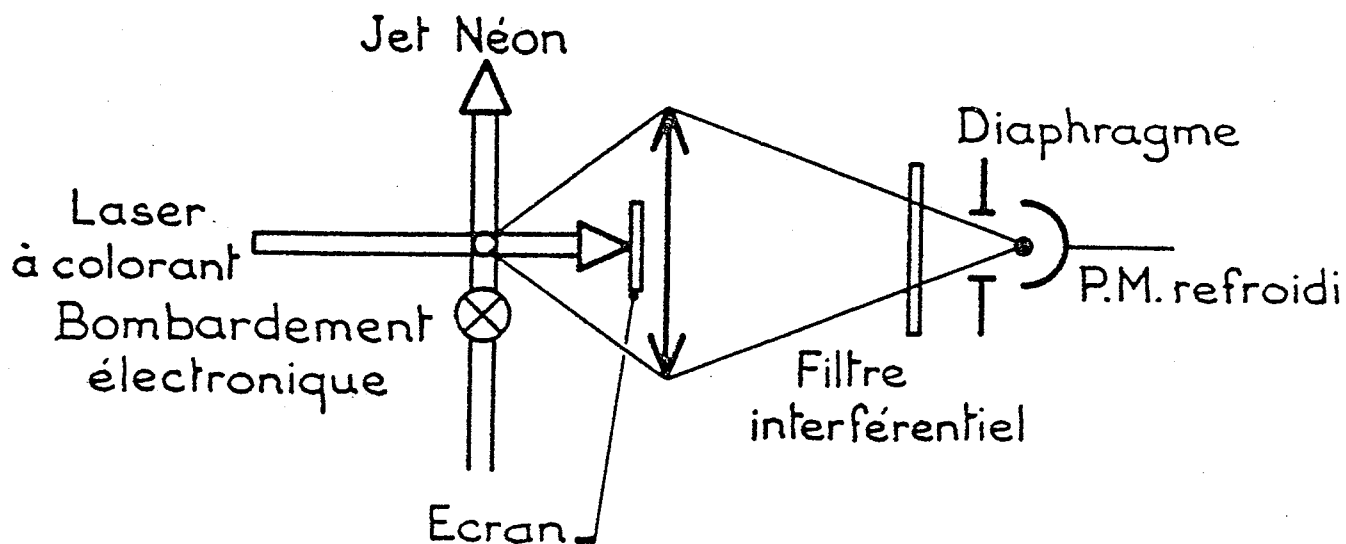


Figure 11 : Schéma du dispositif expérimental utilisé dans le cas du jet de néon.

Dans ces conditions, les résonances apparaissent en général sur un fond de lumière parasite non négligeable ; les variations de ce fond parasite sont relativement peu importantes et lentes, ce qui le rend moins gênant.

b) Jet excité par décharge dans le "four".

Dans le cas où le jet est excité par une décharge dans le "four", la situation est beaucoup plus confortable et on peut détecter la fluorescence émise dans une direction perpendiculaire à la fois au laser et au jet atomique (figure 12). De plus, dans le krypton, une partie de la fluorescence se trouve toujours à une longueur d'onde très différente de la longueur d'onde d'excitation (à cause de la séparation des niveaux de  $4p^5s$  en deux groupes très espacés en énergie (figure 1)) ; ceci permet d'utiliser dans le montage expérimental un filtre peu sélectif (filtre coloré) dont la transmission est très élevée ( $\mathcal{T} > 90\%$ ). Il reste

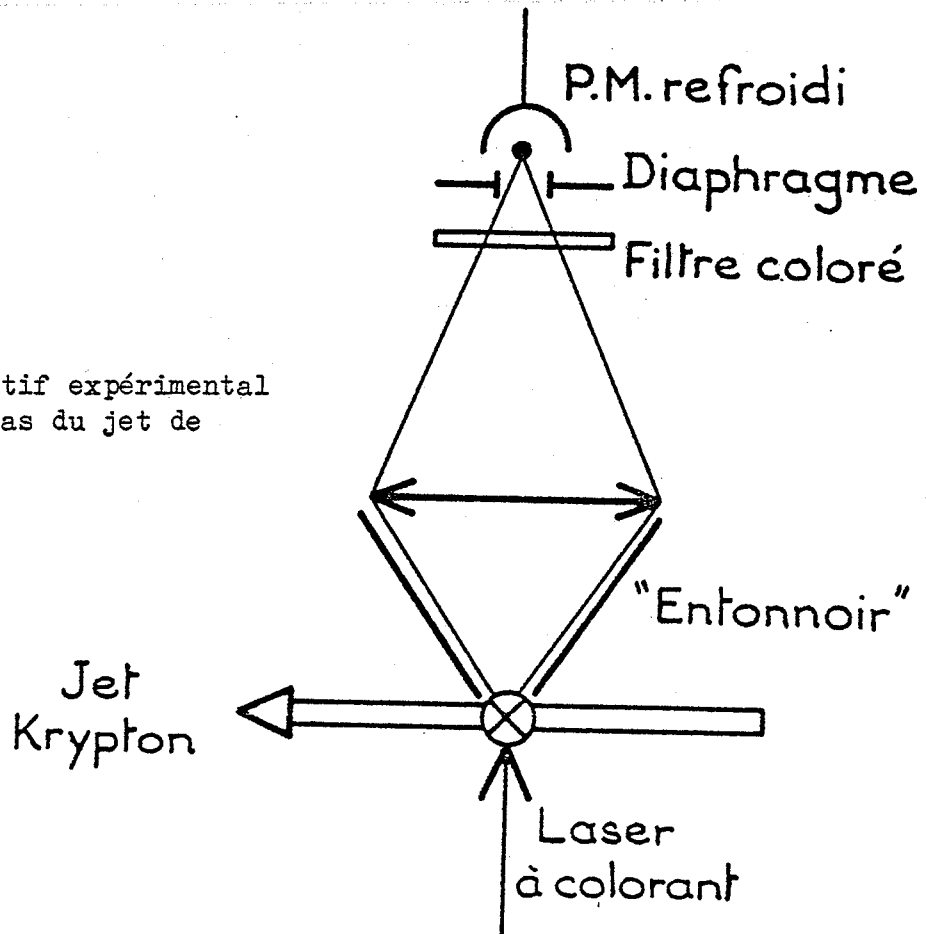


Figure 12 :

Schéma du dispositif expérimental utilisé dans le cas du jet de krypton.

toutefois un peu de lumière diffusée provenant de la décharge elle-même à travers la fente percée dans la cloison séparant les deux parties de l'appareil (figure 7, 10). La région d'interaction étant libre de tout dispositif encombrant, nous avons pu réduire encore le niveau de lumière parasite en utilisant une sorte d'entonnoir à lumière noirci (figure 12). Nous avons finalement pu détecter les résonances du krypton sur un fond très faible, pratiquement négligeable (cf. §.A.III.2°).

#### 4° - Les lasers, l'étalonnage en fréquence.

Les expériences ont été réalisées à l'aide du laser à colorant continu monofréquence mis au point au Laboratoire Aimé Cotton par S. Liberman et J. Pinard [21]. Ce laser, qui fut dans les années 73-74 un des premiers lasers à colorant monofréquence, permet d'obtenir en fonctionnement habituel une puissance de sortie de 1 à 2 mW, avec une largeur de raie de 10 à 15 MHz et est continûment balayable sur plus de 10 GHz. Au cours d'un balayage de quelques GHz les variations de l'intensité moyenne sont peu importantes mais, par contre, les fluctuations rapides d'intensité peuvent être assez grandes. Ce laser est asservi en fréquence et son balayage est contrôlé et étalonné par un dispositif du type interféromètre de Michelson mis au point au Laboratoire Aimé Cotton par P. Juncar et J. Pinard : le sigmamètre [37-39]. Cet instrument permet de commander le balayage du laser pas à pas, le pas minimum étant dans notre cas de 7,5 MHz. Pour ces expériences sur jet nous ne disposons que du premier modèle de sigmamètre [38] qui présentait de nombreuses imperfections conduisant parfois à des non-linéarités importantes dans le balayage en fréquence du laser à colorant. De nombreuses améliorations ont depuis été apportées au sigmamètre dont un modèle nouveau a récemment permis des mesures optiques de haute précision (1 MHz) sur des isotopes instables du sodium [40].

Dans nos expériences sur le krypton nous avons dû, pour améliorer la précision de nos mesures, utiliser des franges d'étalonnage données



par un Fabry-Perot sphérique de 1 m de long (intervalle spectral libre: 2,5 mK) stabilisé en température. Malgré cela, les non-linéarités du balayage ont été le facteur limitant la précision obtenue. En spectroscopie laser il est souvent plus facile d'obtenir une très grande résolution (avec un rapport signal sur bruit convenable) qu'une très grande précision ; notre expérience sur les raies 556 nm et 557 nm (A.III.2°) du krypton est à cet égard très démonstrative.

Pour l'expérience sur la raie 587 nm du krypton (A.III.3°) nous avons également utilisé, outre le laser précédent, un laser commercial à jet (Spectra Physics, modèle 580) qui fournit une puissance de sortie plus importante.

### III. Résultats expérimentaux.

#### 1° - Jet de néon : structure hyperfine de $^{21}\text{Ne}$ ( $I=3/2$ ) [28].

Les configurations basses de Ne I ont été étudiées au Laboratoire Aimé Cotton par S. Liberman [15, 18] tant en ce qui concerne les fonctions d'onde (couplage intermédiaire) qu'en ce qui concerne la structure hyperfine de  $^{21}\text{Ne}$  (spin nucléaire  $I=3/2$ ). Ces études paramétriques ont notamment permis, à partir de quelques données expérimentales, de prévoir la valeur des constantes de structure hyperfine dipolaire magnétique A et quadrupolaire électrique B pour un grand nombre de niveaux. Quand nous avons entrepris notre expérience avec le jet de néon, il n'existait que peu de mesures à confronter à ces prévisions théoriques. De telles mesures, du fait de la faible valeur de certaines constantes hyperfines, du grand nombre de composantes hyperfines dans les raies et de l'effet Doppler, sont difficiles à obtenir en spectroscopie conventionnelle même à très haute résolution [41, 42].

Pour étudier le néon, nous avons utilisé le jet atomique excité par bombardement électronique dans la configuration expérimentale représentée sur la figure 11. Nous avons ainsi étudié trois raies du néon :  $\lambda = 5882 \text{ \AA}$  ( $2p_2 \rightarrow 1s_5$ ),  $\lambda = 5945 \text{ \AA}$  ( $2p_4 \rightarrow 1s_5$ ) et  $\lambda = 6143 \text{ \AA}$  ( $2p_6 \rightarrow 1s_5$ ) ; les raies de fluorescence utilisées pour la détection étant respectivement  $\lambda = 6599 \text{ \AA}$  ( $2p_2 \rightarrow 1s_2$ ),  $\lambda = 6678 \text{ \AA}$  ( $2p_4 \rightarrow 1s_2$ ) et  $\lambda = 6929 \text{ \AA}$  ( $2p_6 \rightarrow 1s_2$ ). Un exemple d'enregistrement obtenu avec du néon naturel est donné sur la figure 13 pour la raie  $\lambda = 5882 \text{ \AA}$  ; la largeur de raie est d'environ 3 mK ( $1 \text{ mK} = 10^{-3} \text{ cm}^{-1}$ ) et est essentiellement due à la largeur Doppler résiduelle résultant de la faible collimation du jet atomique. Pour les trois raies étudiées nous avons, avec un mélange enrichi en  $^{22}\text{Ne}$ , vérifié que nous obtenions pour le déplacement isotopique  $^{22}\text{Ne} - ^{20}\text{Ne}$  des valeurs en accord avec les mesures antérieures [13].

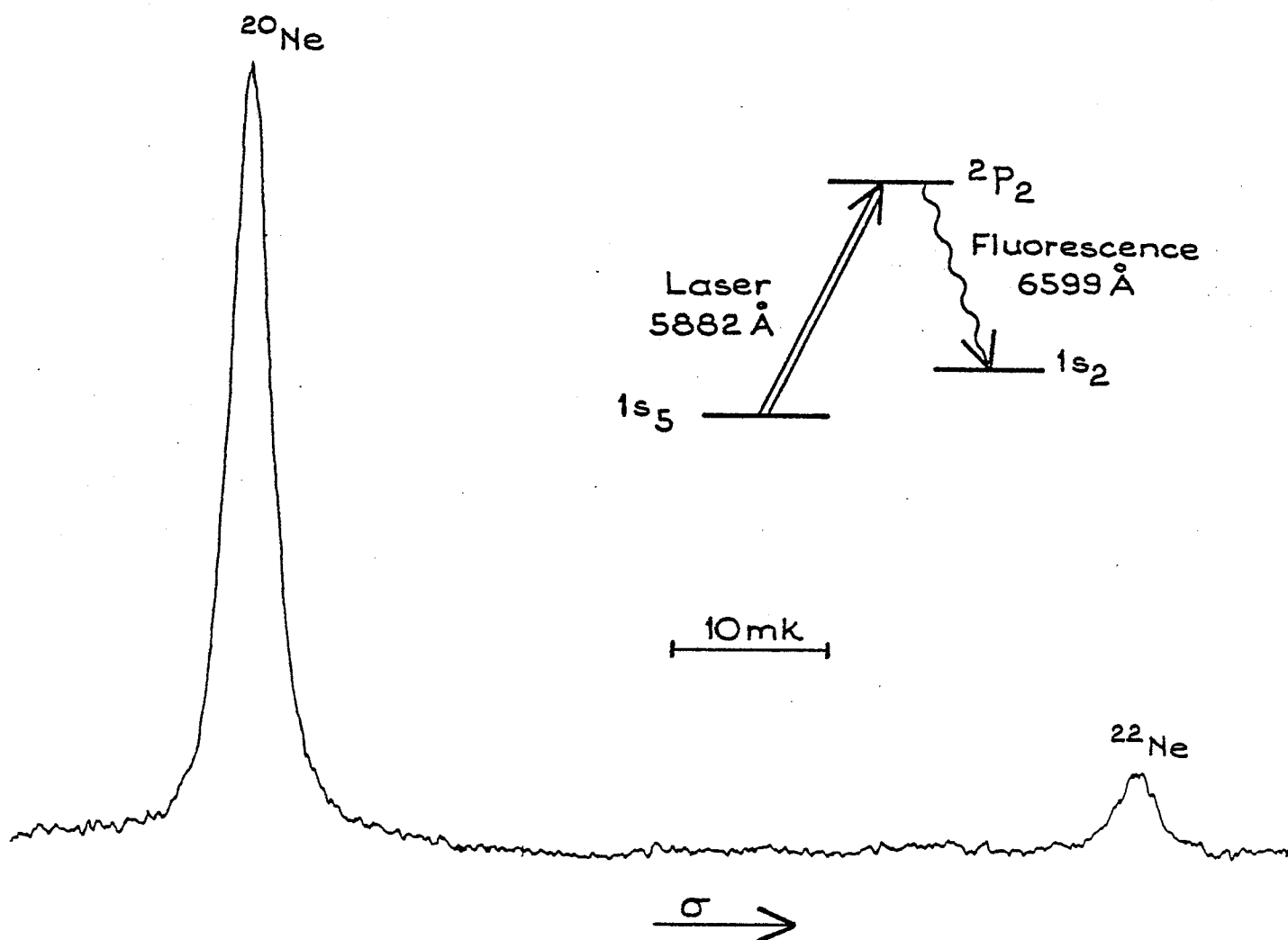


Figure 13 : Enregistrement de la raie  $\lambda = 5882 \text{ \AA}$  obtenu avec du néon naturel (90,9%  $^{20}\text{Ne}$  ; 8,8%  $^{22}\text{Ne}$  ; 0,3%  $^{21}\text{Ne}$ ).

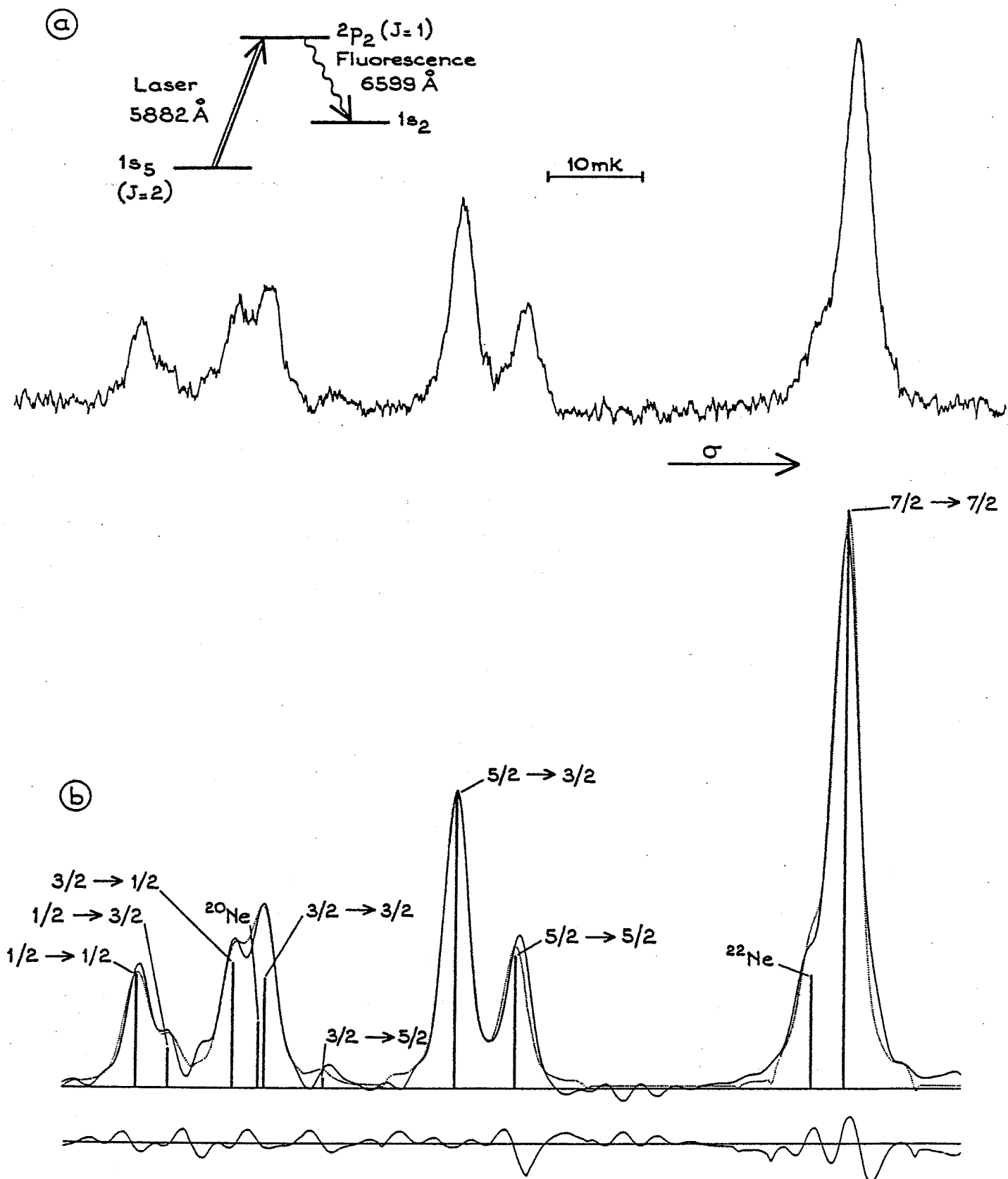
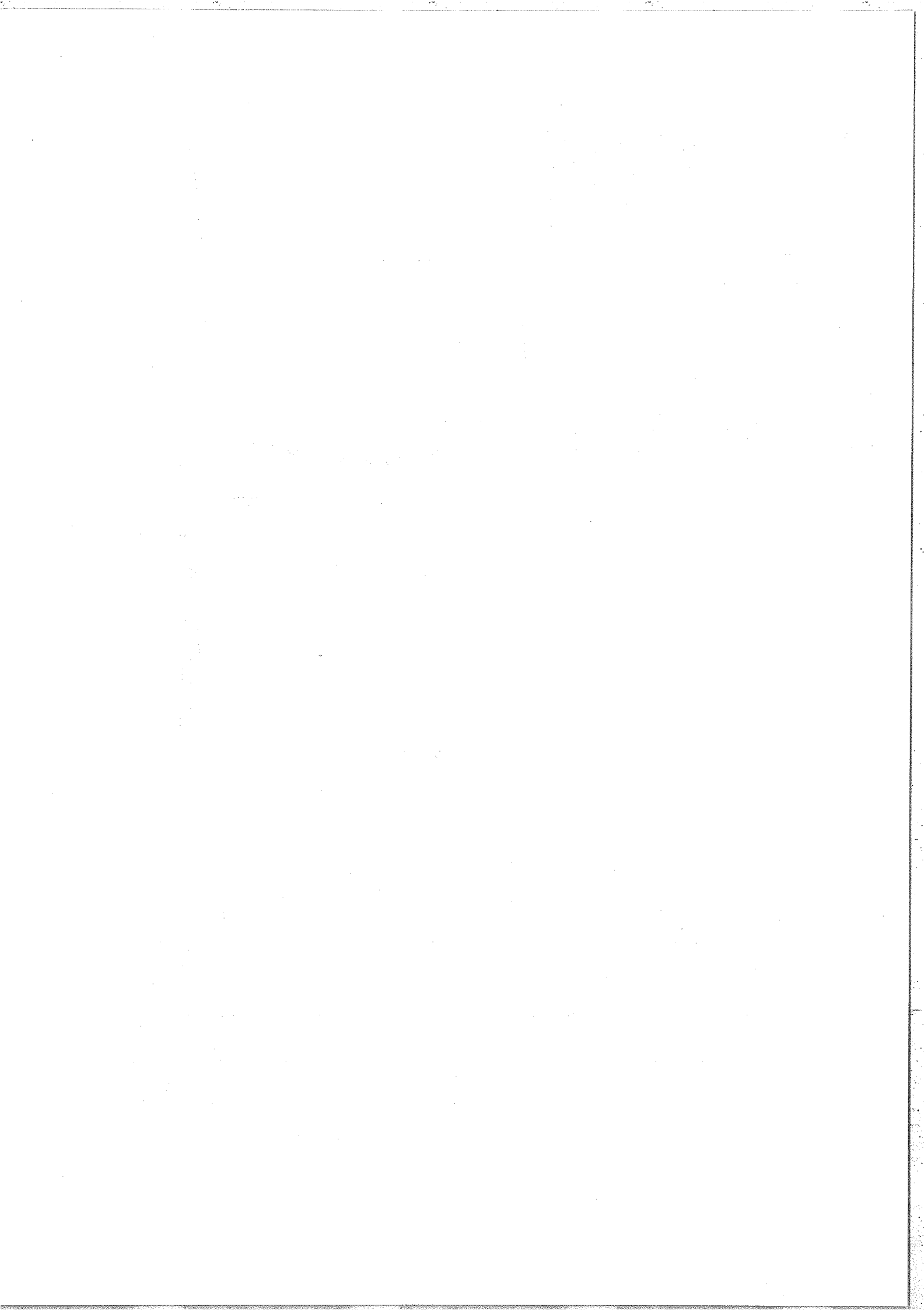


Figure 14 : Structure hyperfine de la raie  $\lambda = 5882 \text{ \AA}$  de  $^{21}\text{Ne}$   
 a) structure enregistrée  
 b) comparaison entre le profil expérimental filtré (traits pleins) et le profil reconstitué (pointillés); la courbe du bas donne la différence des 2 profils.



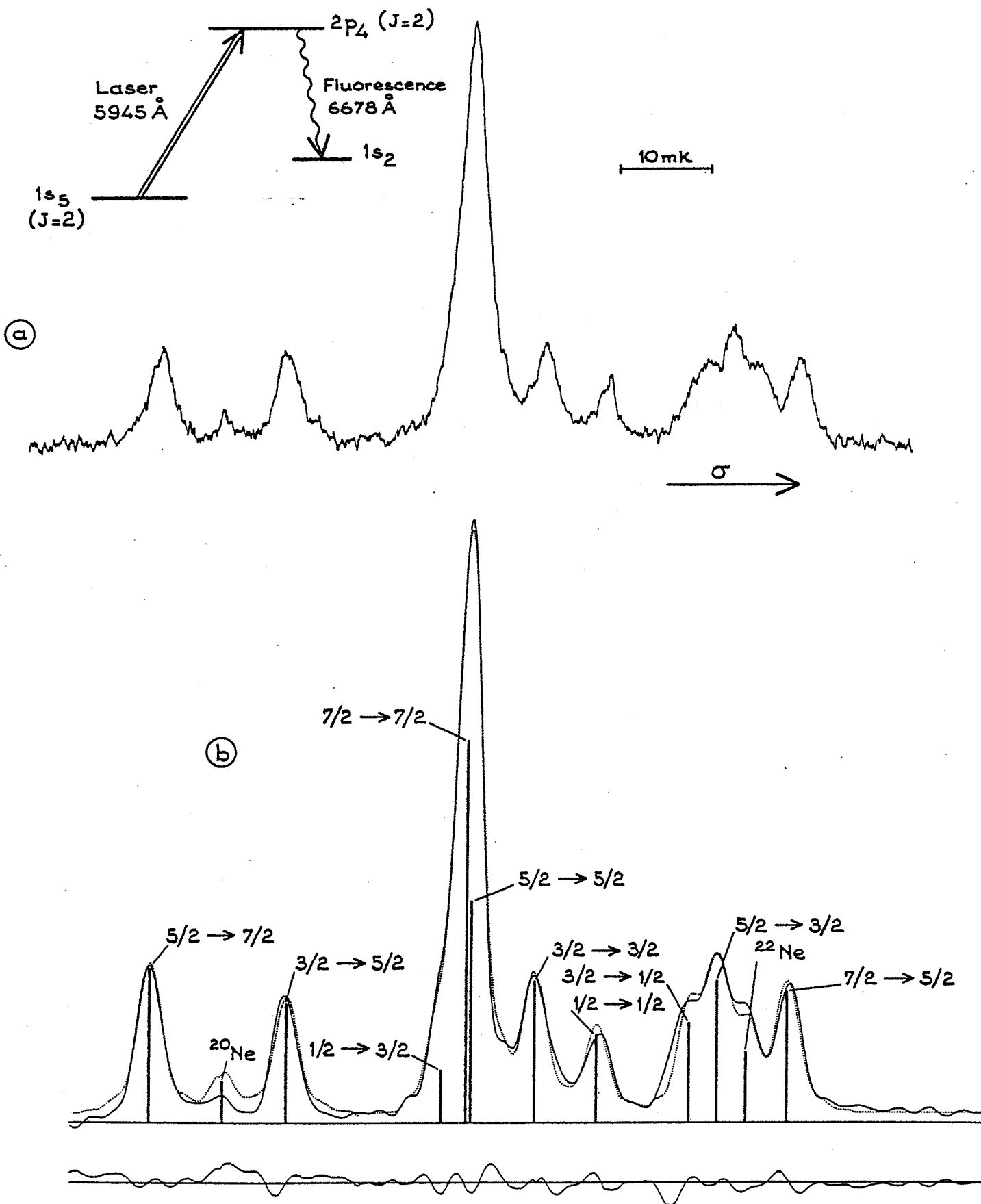
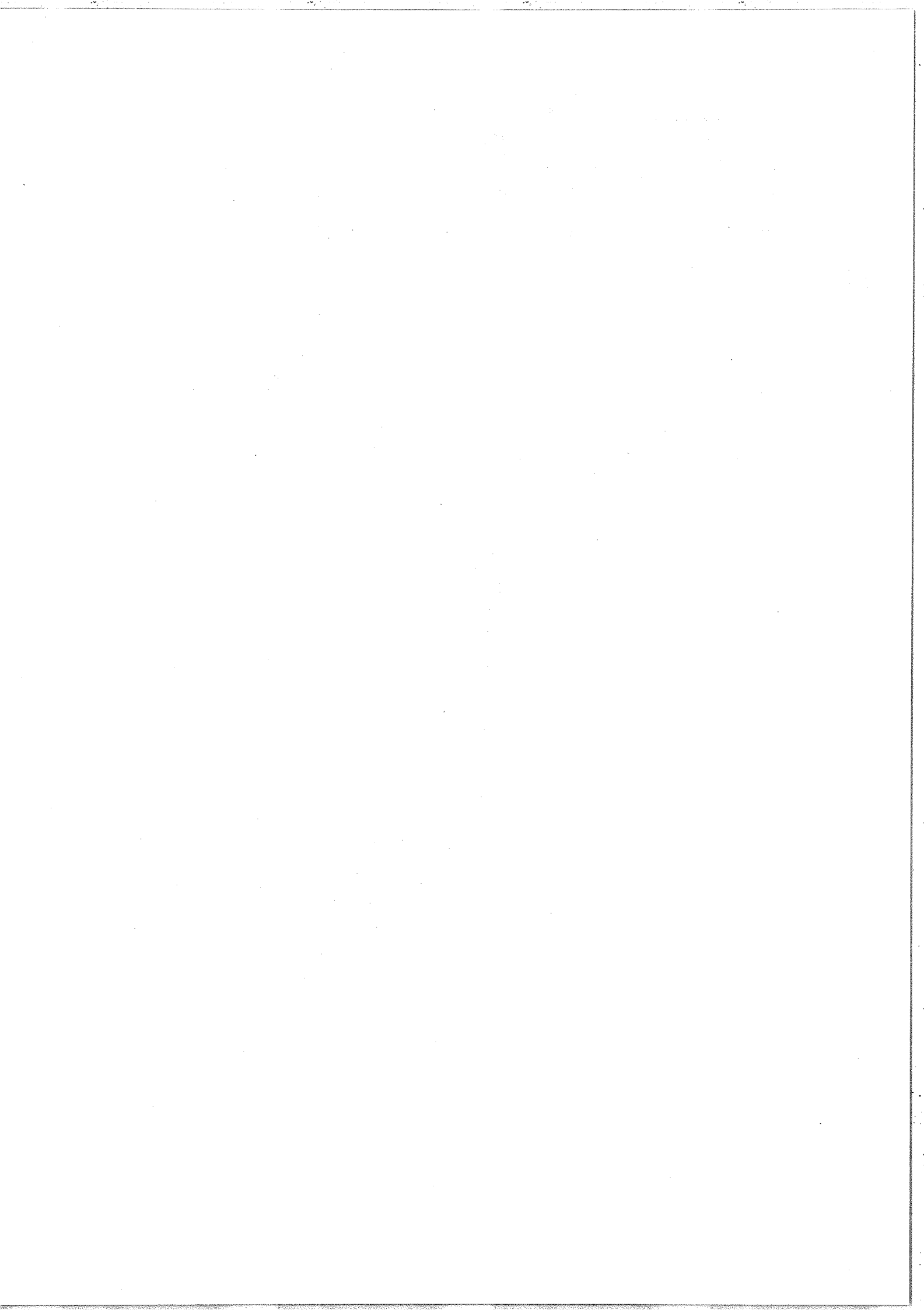


Figure 15 : Structure hyperfine de la raie  $\lambda = 5945 \text{ \AA}$  de  $^{21}\text{Ne}$

- a) structure enregistrée
- b) comparaison entre le profil expérimental filtré (traits pleins) et le profil reconstitué (pointillés); la courbe du bas donne la différence des 2 profils.



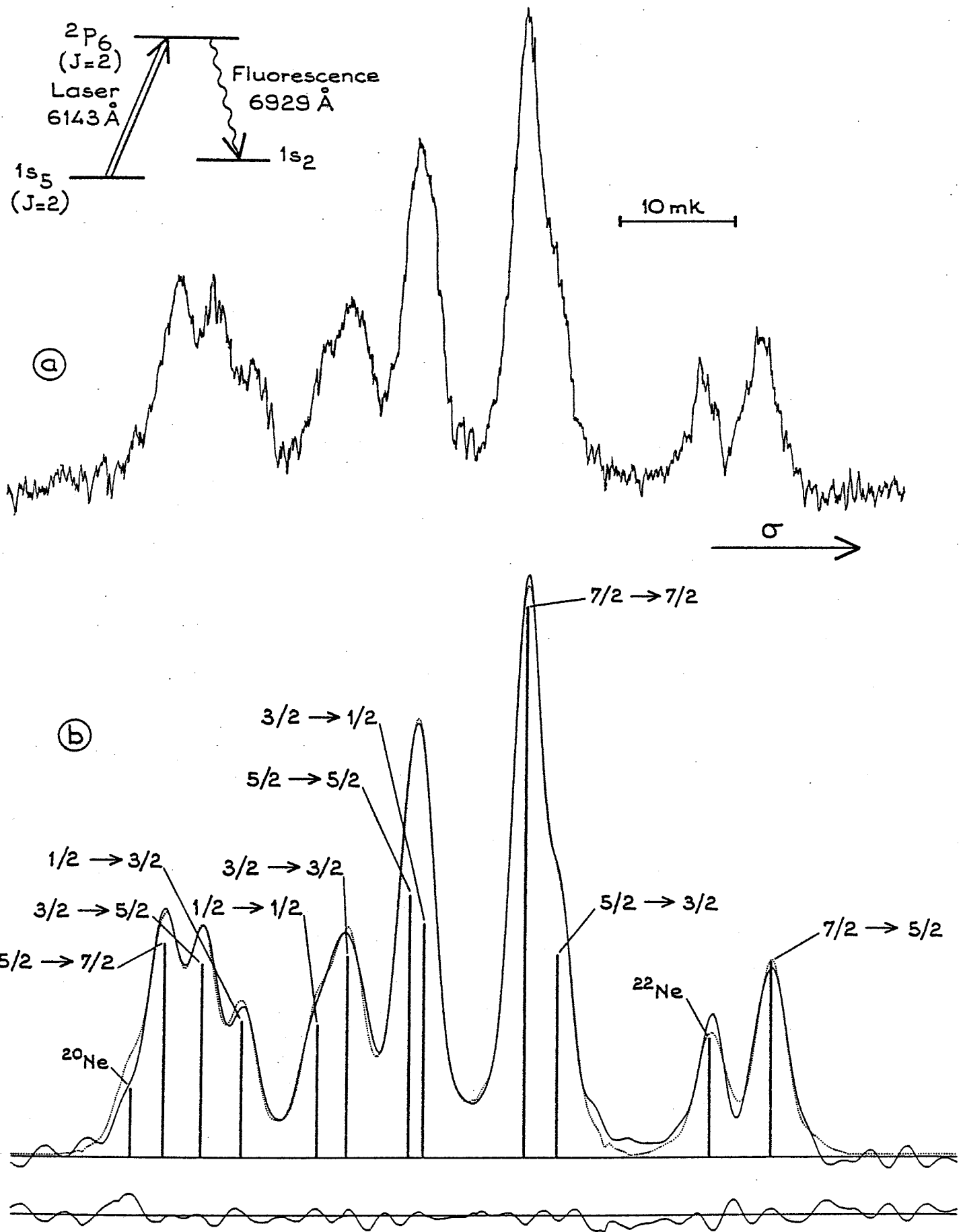
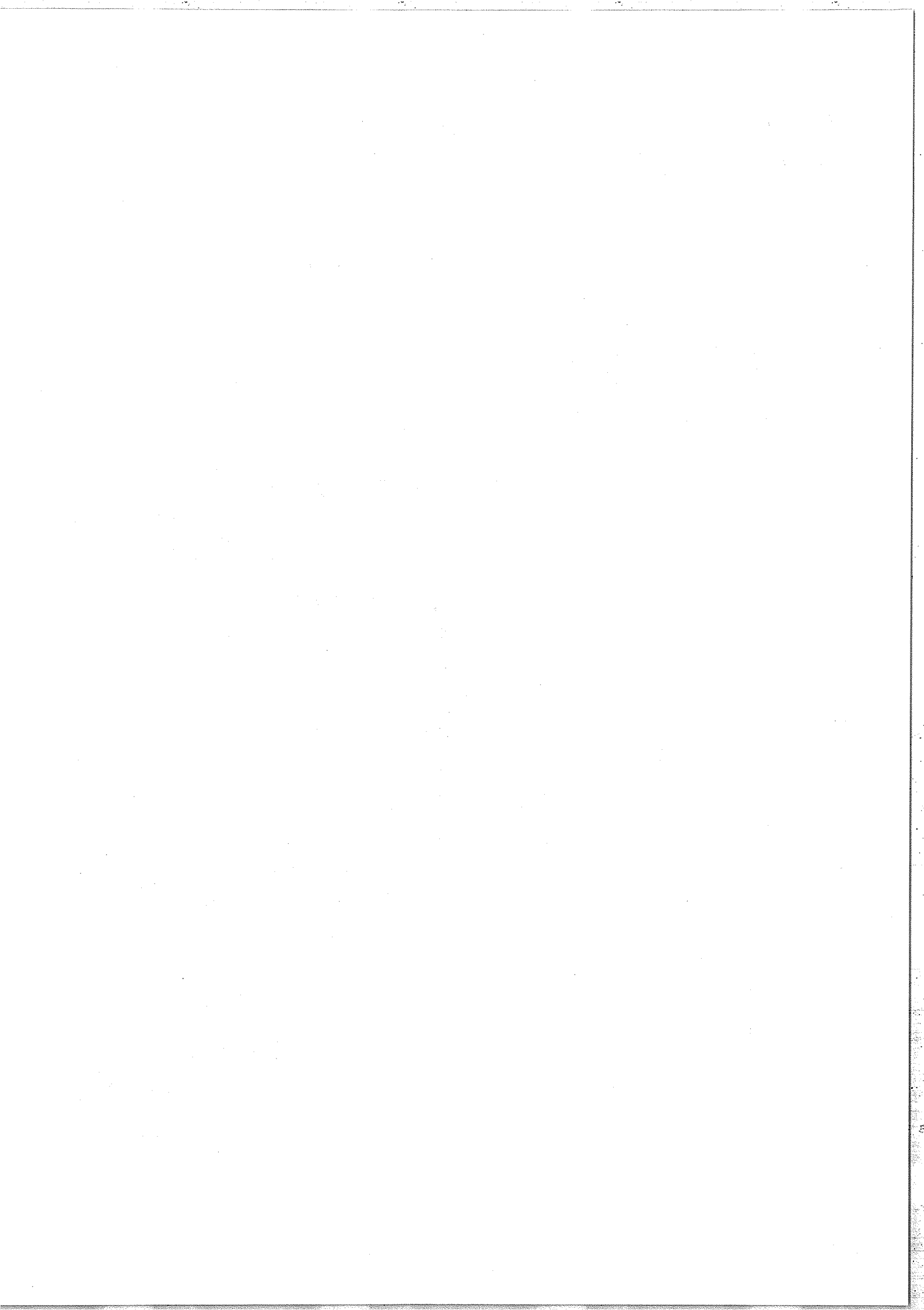


Figure 16 : Structure hyperfine de la raie  $\lambda = 6163 \text{ \AA}$  de  $^{21}\text{Ne}$   
 a) structure enregistrée  
 b) comparaison entre le profil expérimental filtré (traits pleins) et le profil reconstitué (pointillés); la courbe du bas donne la différence des 2 profils.





En utilisant un échantillon de néon enrichi en isotope 21 (91%  $^{21}\text{Ne}$  ; 5,7%  $^{22}\text{Ne}$  ; 3,3%  $^{20}\text{Ne}$ ) nous avons enregistré la structure hyperfine des trois raies indiquées précédemment (figures 14a, 15a, 16a). La structure de ces raies n'est que partiellement résolue et nous avons dû réaliser une reconstitution théorique de la courbe enregistrée pour obtenir la valeur des constantes de structure hyperfine. Pour cela, les courbes expérimentales sont enregistrées point par point sur une bande de papier en utilisant un voltmètre digital, un encodeur et une perforatrice. Les données enregistrées sur bande papier sont décodées et transcrites sur des fichiers de l'UNIVAC 1110 de l'Université Paris-Sud pour être traitées mathématiquement. On commence par filtrer les enregistrements en supprimant les composantes à haute fréquence, puis on utilise les enregistrements filtrés (en traits pleins sur les figures 14b, 15b et 16b) pour la reconstitution du profil.

Les constantes de structure hyperfine du niveau inférieur (méta-stable  $1s_5$ ) ont été mesurées de façon très précise par résonance magnétique [43] et les déplacements isotopiques entre les isotopes pairs ( $^{22}\text{Ne} - ^{20}\text{Ne}$ ) sont également connus avec précision [13] ; les positions relatives des composantes de la structure enregistrée ne dépendent donc, pour chaque raie, que de trois paramètres : les constantes A et B du niveau supérieur et le déplacement isotopique pair-impair de la transition étudiée. Comme dans nos enregistrements de structure hyperfine aucune composante n'est suffisamment bien isolée, le profil expérimental ("fonction d'appareil") doit être ajusté numériquement aux courbes expérimentales tout comme les paramètres de position. Nous avons, pour cela, utilisé un programme écrit par O. Robaux [44] et suivi une procédure déjà exposée précédemment [42]. De plus, à cause de l'anisotropie produite par le bombardement électronique (peuplement différent des sous-niveaux Zeeman [45]) et par la polarisation du laser (polarisation linéaire  $\rightarrow$  transitions  $\Delta M=0$ , pompage Zeeman), à cause également du pompage hyperfin et du fait qu'on ne recueille qu'une partie de la fluorescence émise, les intensités des différentes composantes hyperfines diffèrent sensiblement de celles que l'on peut calculer en

utilisant les abondances isotopiques et les intensités relatives dans un multiplet hyperfin. En conséquence, les intensités doivent être considérées comme des paramètres dans le processus de reconstitution du spectre enregistré. Nous avons pu vérifier que, bien que la reconstitution du profil enregistré soit évidemment très sensible à ces paramètres d'intensité, les valeurs obtenues pour A et B y sont presque insensibles tant que ces intensités demeurent dans un domaine de valeurs raisonnables.

Les valeurs obtenues pour les constantes de structure hyperfine sont indiquées dans le tableau 1 où elles sont comparées avec d'autres valeurs expérimentales et avec les valeurs théoriques de S. Liberman. Les valeurs données dans cette table ("ce travail") sont des moyennes correspondant à plusieurs enregistrements de la même raie ; pour obtenir une indication sur la précision des mesures, nous avons calculé d'écart quadratique moyen pour chaque ensemble d'enregistrements mais, comme le nombre d'enregistrements était trop faible, nous avons attribué à chacune des valeurs de A une incertitude égale à deux fois la moyenne des e.q.m. obtenus pour les A. L'incertitude sur les paramètres B a été évaluée de la même manière.

Simultanément à notre étude, E. Giacobino a mesuré, en utilisant une méthode de croisement de niveaux, les A et B de la plupart des niveaux 2p du néon [48] ; les résultats très précis ainsi obtenus sont en très bon accord avec les nôtres. Nos mesures sont également en bon accord avec les valeurs théoriques de S. Liberman bien que de petites différences puissent être notées pour les valeurs de A. Ces différences ont été attribuées par E. Giacobino [48] à un effet de l'électron extérieur de la configuration  $2p^5 3p$  ( $a_{3p} \neq 0$ ) dont l'influence avait été négligée par S. Liberman.

Pour ce qui concerne le déplacements isotopique  $^{22}\text{Ne} - ^{21}\text{Ne}$  nous avons trouvé (en mK) : 26,4, 27,4 et 28,6 respectivement pour les raies  $\lambda = 6143 \text{ \AA}$ ,  $5945 \text{ \AA}$  et  $5882 \text{ \AA}$ . Ces valeurs sont en accord avec

	A ( $2p_2$ )	B ( $2p_2$ )	A ( $2p_4$ )	B ( $2p_4$ )	A ( $2p_6$ )	B ( $2p_6$ )
ce travail [28]	$2,45 \pm 0,15$	$0,16 \pm 0,20$	$-10,43 \pm 0,15$	$1,51 \pm 0,20$	$-6,19 \pm 0,15$	$-2,20 \pm 0,20$
[46]	2,5	(0)	-	-	-	-
[47]	-	-	$-7,3 \pm 0,1$	0,5	-	-
[41]	-	-	$-10,4 \pm 0,3$	$ B  < 2$	-	-
[42]	-	-	$-10,4 \pm 0,4$	$1,7 \pm 1,1$	-	-
[48]	$2,51 \pm 0,03$	-	$-10,32 \pm 0,04$	$1,64 \pm 0,02$	$-6,19 \pm 0,03$	$-2,29 \pm 0,02$
[49]	-	-	$-10,29 \pm 0,05$	$1,50 \pm 0,20$	-	-
[15,18] Théorie	2,83	0,015	-10,06	1,60	-6,11	-2,31

Tableau 1

Constantes de structure hyperfine (en mK) des niveaux  $2p_2$ ,  $2p_4$  et  $2p_6$  de  $^{21}\text{Ne}$ .

les valeurs que l'on peut déduire des mesures du déplacement isotopique  $^{22}\text{Ne} - ^{20}\text{Ne}$  [13] en supposant que l'on a affaire à un déplacement de masse pur ; la précision (environ 0,2 mK) est cependant insuffisante pour mettre en évidence un éventuel effet de volume dans le néon [16, 41, 42, 50].

La précision de nos mesures de structure hyperfine et de déplacement isotopique pourrait être améliorée d'une part en augmentant la résolution (diminution de la largeur Doppler résiduelle et, d'autre part, en augmentant la précision de l'échelle de fréquence du laser. En utilisant un jet de néon avec une décharge en cathode creuse, R.-J. Champeau a pu observer une largeur de raie inférieure à 2 mK. Le sigmamètre de deuxième génération [40] devrait dans ces conditions permettre, si on devait refaire ces mesures, d'obtenir une précision comparable à celle obtenue dans l'expérience de croisement de niveaux.

2° - Jet de krypton : déplacements isotopiques et structure hyperfine ( $^{83}\text{Kr}$ ,  $I=9/2$ ) de transitions partant d'un niveau métastable [51].

Le déplacement isotopique du krypton présente un intérêt particulier en raison de la place des isotopes de cet élément par rapport au nombre magique de neutrons  $N=50$ . Sur un certain nombre d'éléments on a pu mettre en évidence un effet de fermeture de couche sur le déplacement isotopique de volume, cet effet traduisant une évolution irrégulière du carré moyen de la répartition des charges dans le noyau  $\langle r^2 \rangle$  quand on passe d'un isotope à l'autre [17]. Dans le krypton ( $Z=36$ ), l'existence d'un effet de volume (très faible) a été montrée sur une transition infrarouge faisant intervenir un électron 6s [17, 19]. Un effet de volume notablement plus important est attendu pour les transitions visibles faisant intervenir un électron 5s, de sorte que les déplacements isotopiques de ces raies ont fait l'objet récemment de mesures précises mettant en jeu des techniques de spectroscopie laser sans effet Doppler [20, 51-53].

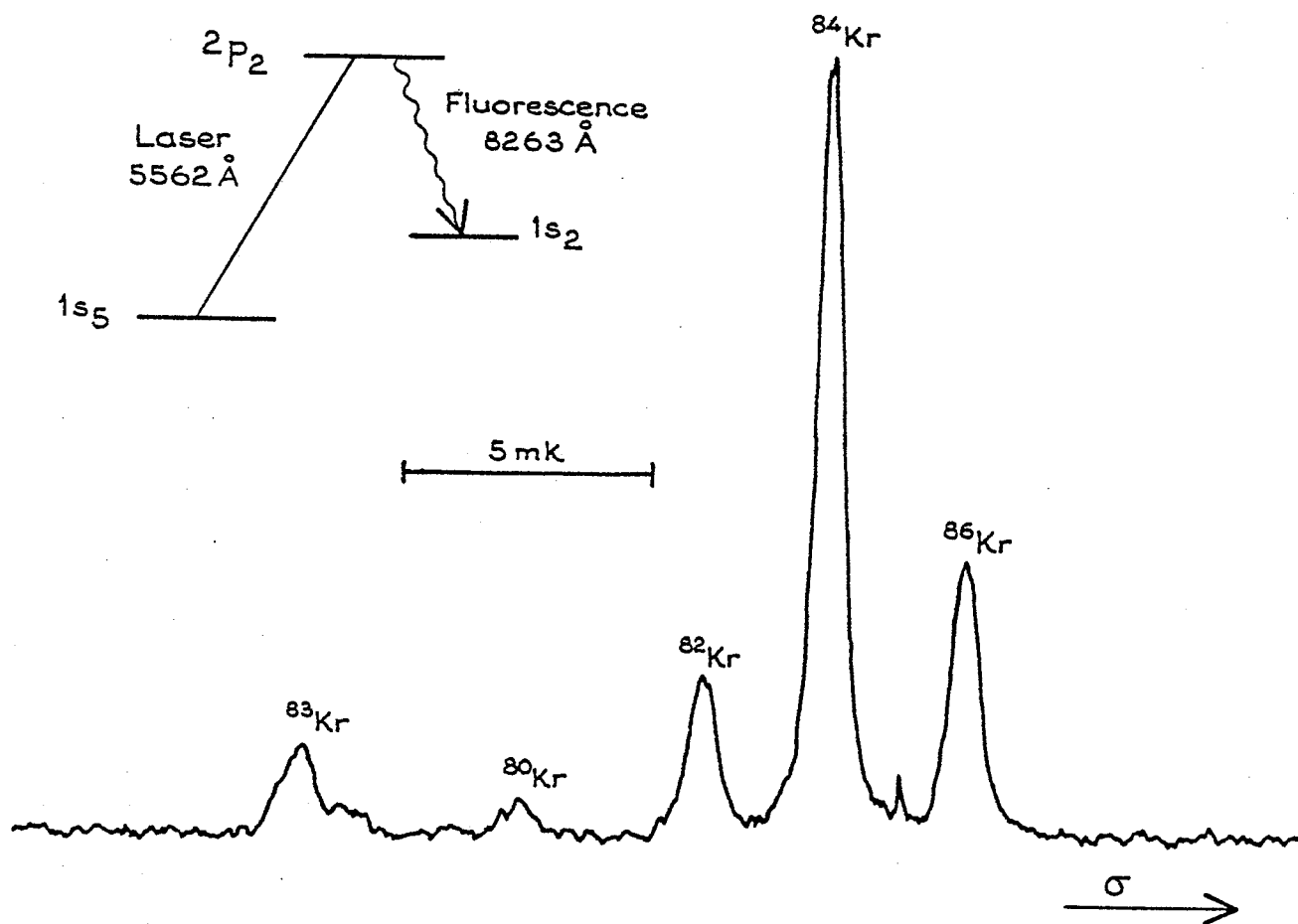
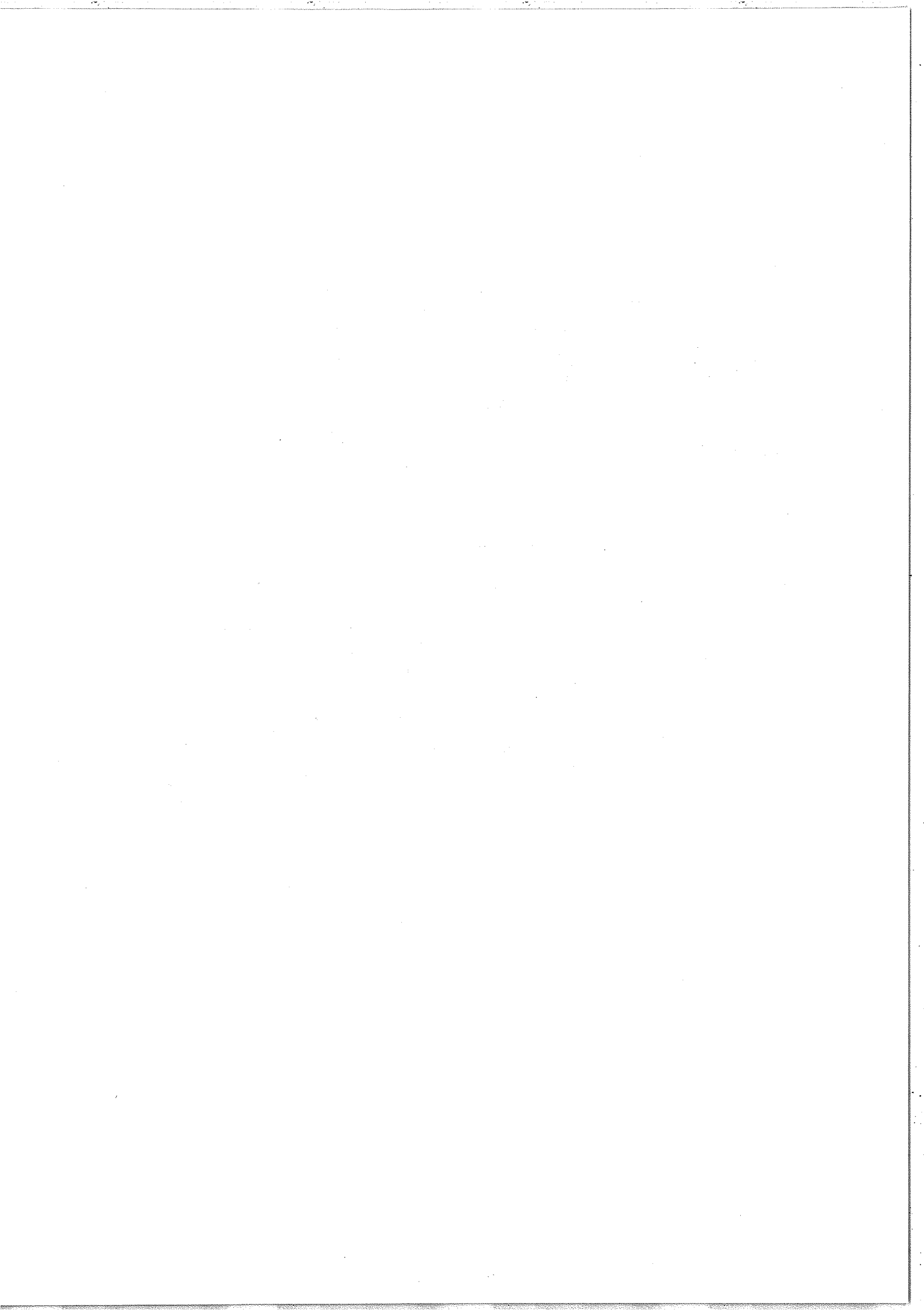


Figure 17 : Principales composantes de la raie  $\lambda = 5562 \text{ \AA}$  de Kr I enregistrées avec un mélange isotopique naturel de krypton.



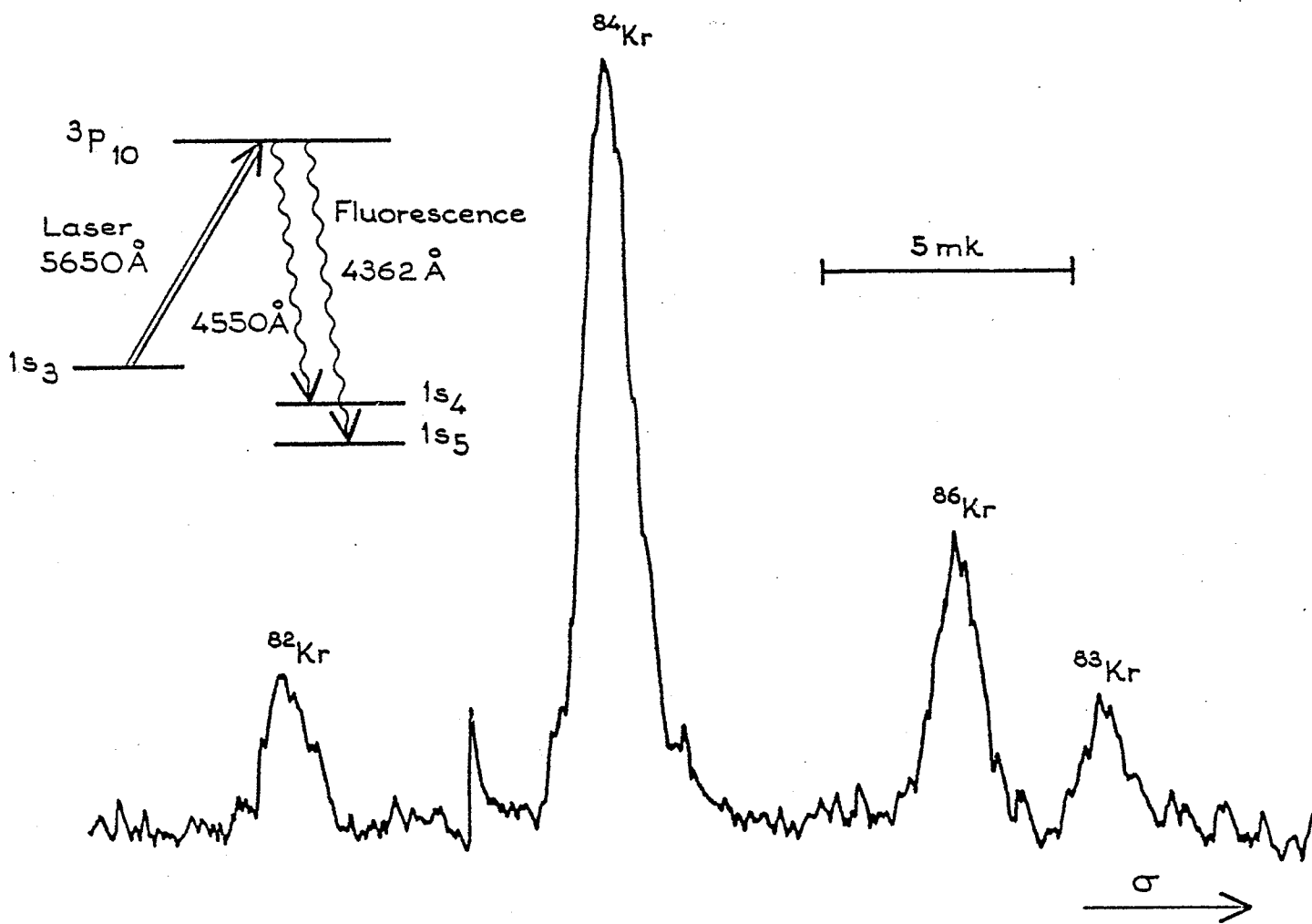
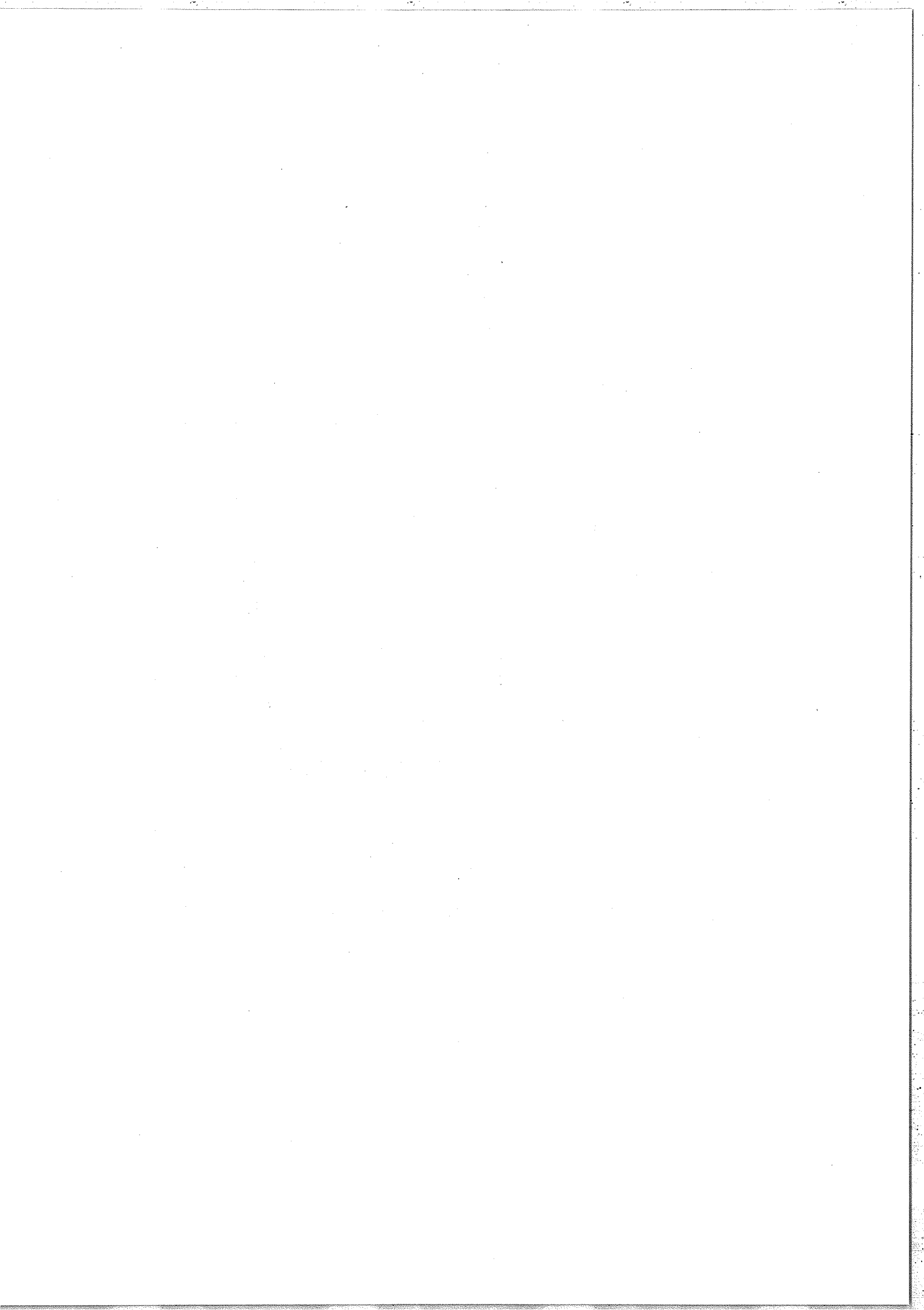


Figure 18 : Principales composantes de la raie  $\lambda = 5650 \text{ \AA}$  de Kr I .





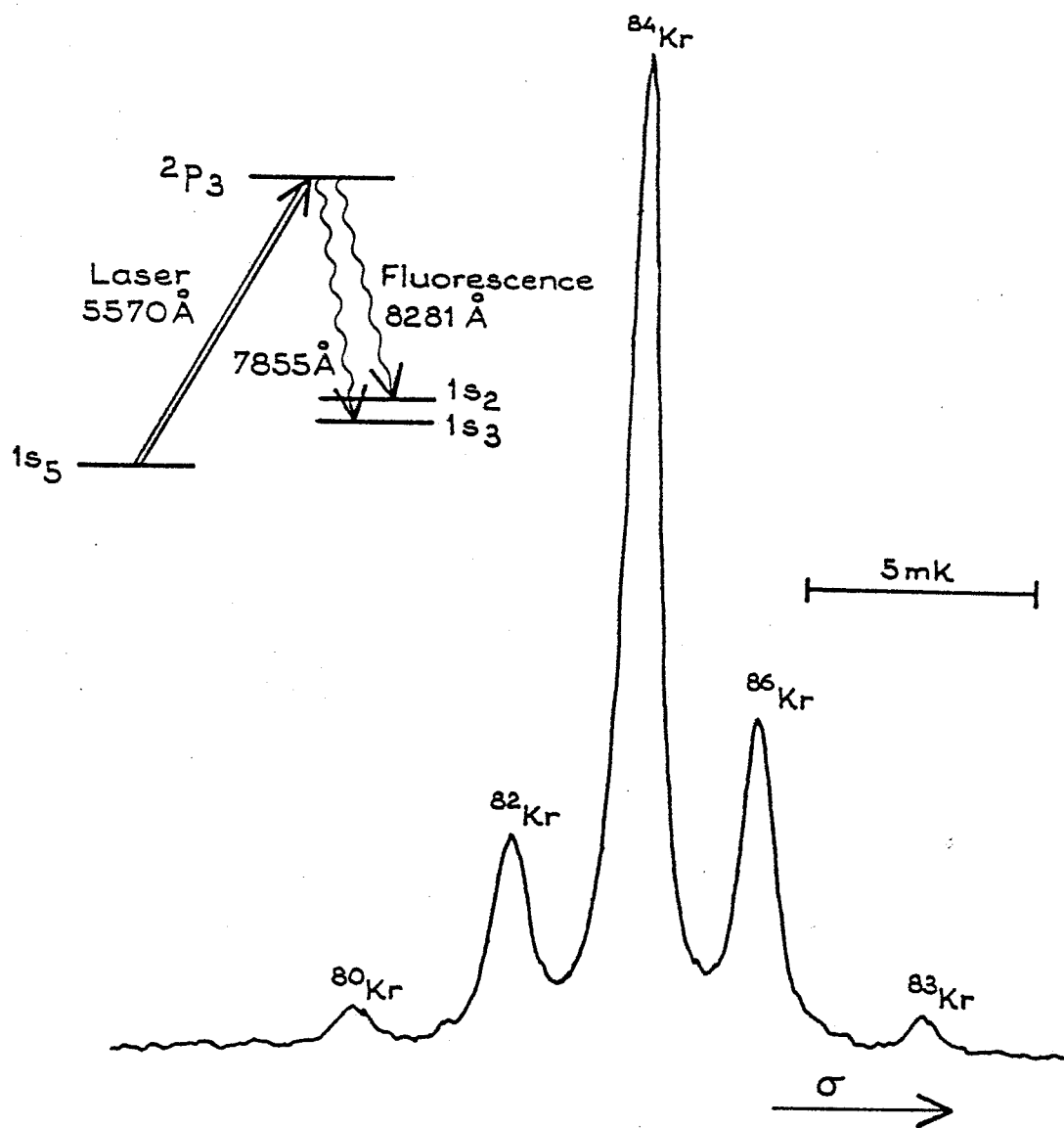
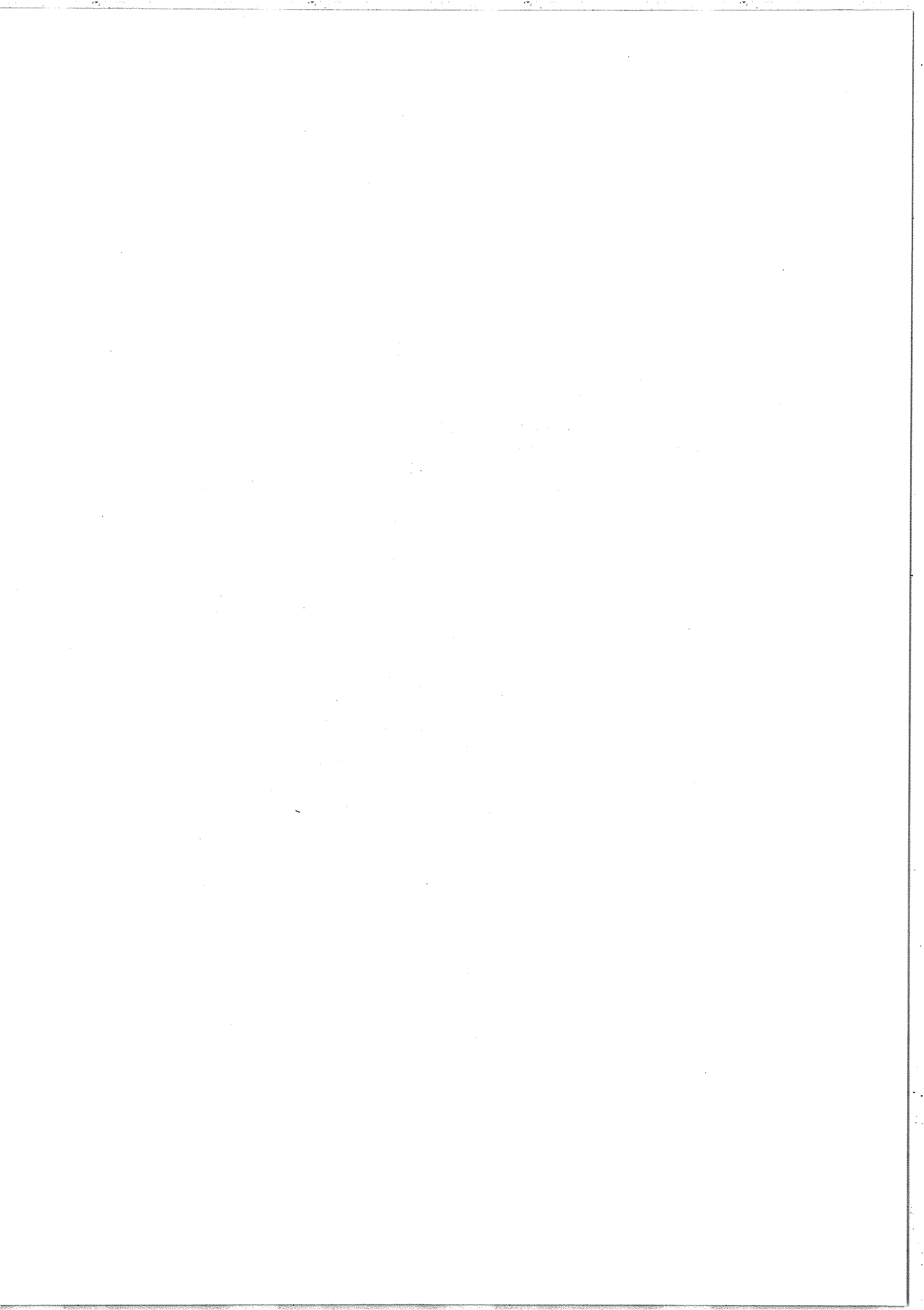
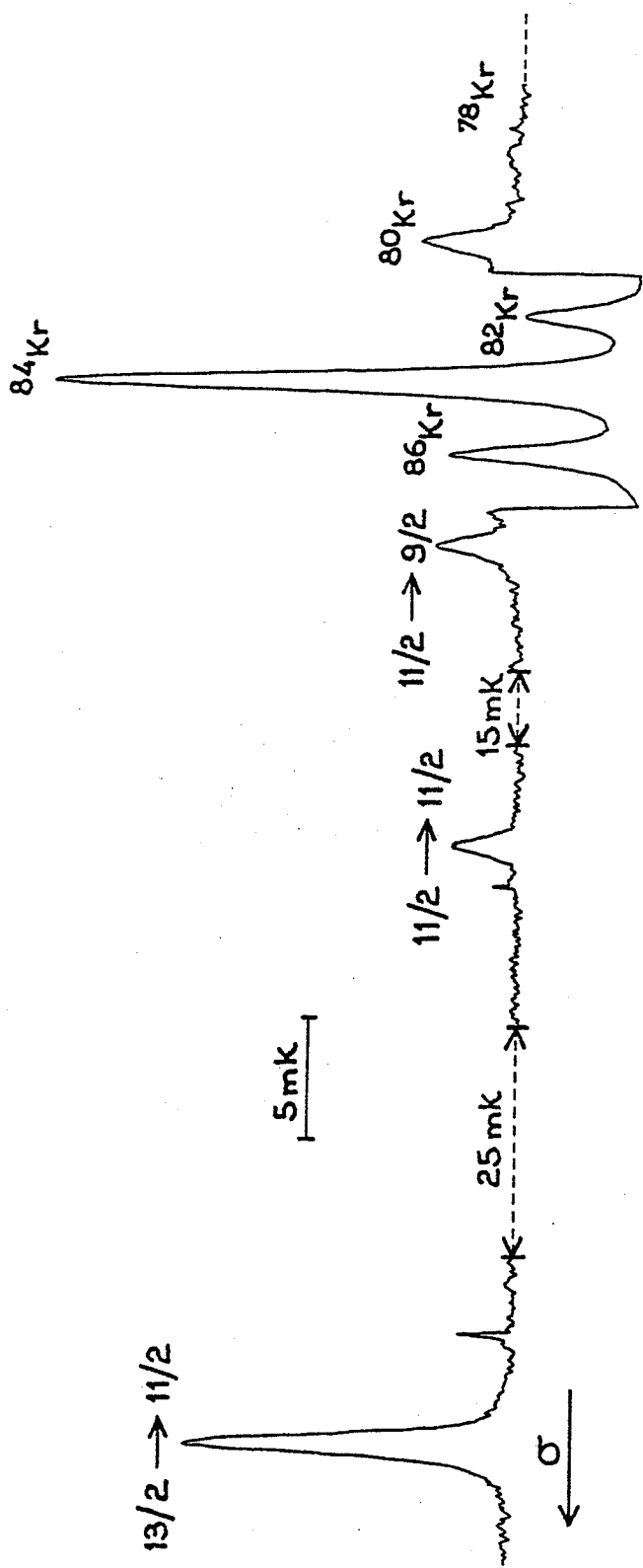


Figure 19 : Principales composantes de la raie  $\lambda = 5570 \text{ \AA}$  de Kr I .





$\lambda = 5570 \text{ \AA}$      $1s_5 (J=2) \rightarrow 2p_3 (J=1)$   
 $83\text{Kr}$      $I = 9/2$

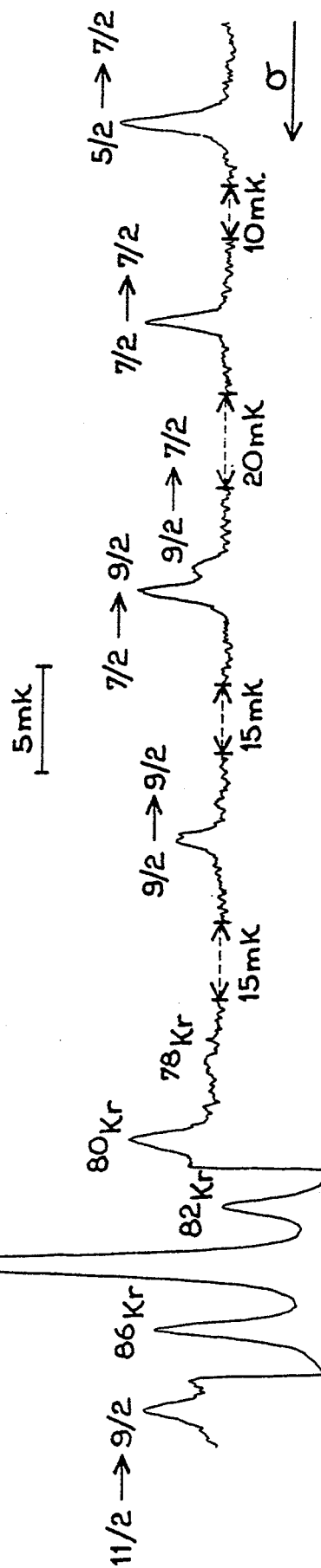
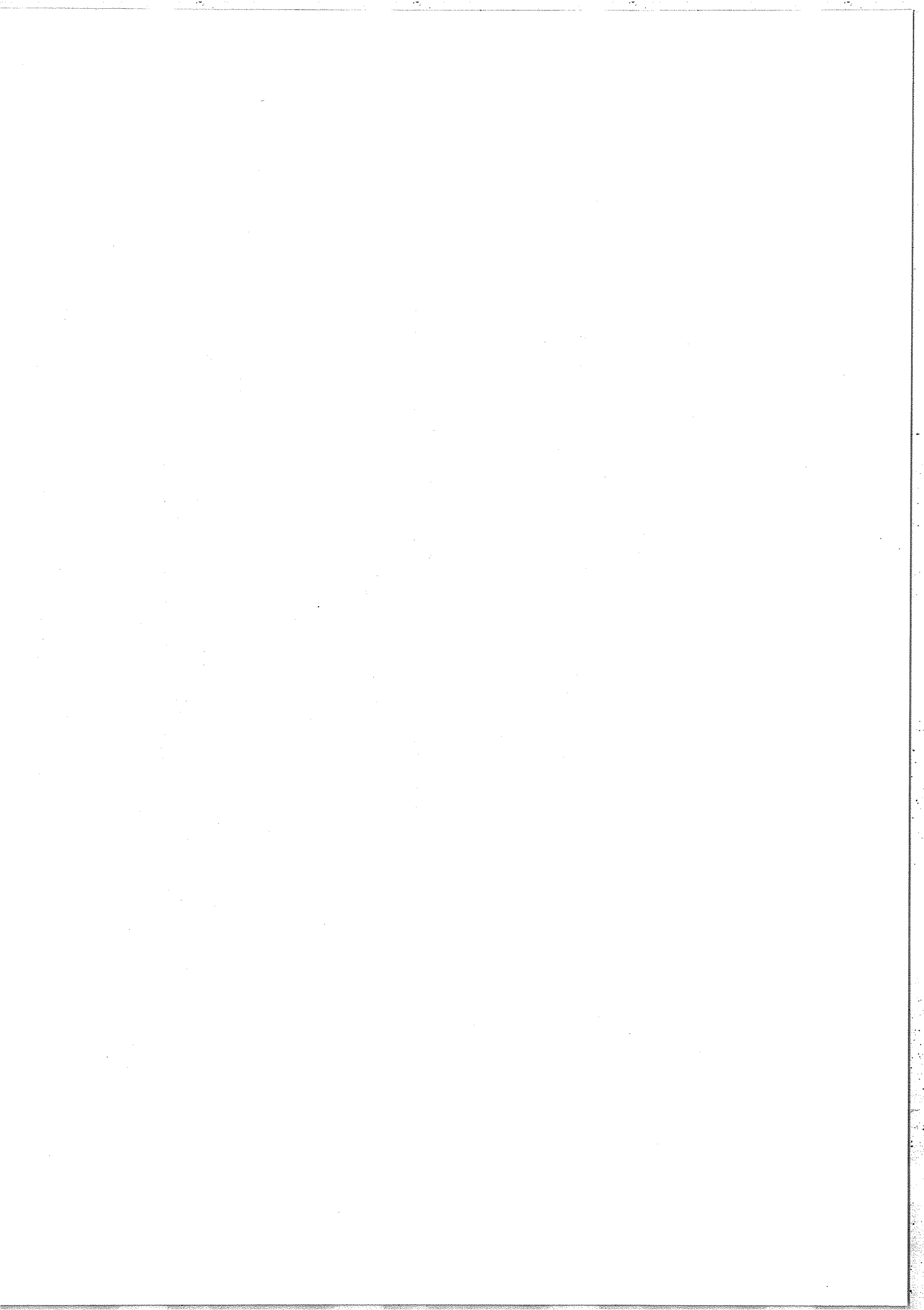


Figure 20 : Structure complète de la raie  $\lambda = 5570 \text{ \AA}$  de Kr I . Les composantes centrales de la raie ont été enregistrées avec un gain 4 fois plus faible que pour le reste de la raie.



En utilisant notre jet atomique de Kr métastable nous avons étudié trois raies de Kr I. Les atomes métastables sont produits dans le "four" de l'appareil par décharge (décharge en cathode creuse ou décharge sans électrodes) comme expliqué précédemment (§.A.II.2°). Nous avons utilisé un mélange isotopique naturel de krypton dont la composition est rappelée dans le tableau 2. Nous avons fait fonctionner le laser à colorant avec de la rhodamine 504 afin d'obtenir l'effet laser aux longueurs d'onde convenables.

isotope	%
78	0,35
80	2,27
82	11,56
83	11,55
84	56,90
86	17,37

Tableau 2

Composition isotopique du mélange naturel de krypton.

Nous avons étudié les raies  $\lambda = 5562 \text{ \AA} (1s_5 \rightarrow 2p_2)$ ,  $\lambda = 5570 \text{ \AA} (1s_5 \rightarrow 2p_3)$  et  $\lambda = 5650 \text{ \AA} (1s_3 \rightarrow 3p_{10})$  de Kr I. Les enregistrements de ces trois raies (figures 17-20) permettent d'avoir une idée de l'efficacité de la méthode de spectroscopie laser sur jet atomique excité.

Deux points particuliers doivent être soulignés :

- i) la probabilité de transition de la raie  $5650 \text{ \AA} (1s_3 \rightarrow 3p_{10})$  est très faible [54] ; on constate sur la figure 18 que les composantes des isotopes les plus abondants sont encore enregistrées avec un rapport signal sur bruit convenable ;
- ii) l'enregistrement complet de la raie  $\lambda = 5570 \text{ \AA} (1s_5 \rightarrow 2p_2)$  (figure 20) montre que les composantes hyperfines de l'isotope  $^{83}\text{Kr}$  (11,55% dans le mélange naturel) sont détectées très facilement ; or, les composantes les plus faibles, visibles sur l'enregistrement, correspondent à moins de 1% de l'intensité totale de la raie.

Les résultats des mesures de déplacements isotopiques sont donnés dans le tableau 3 ; tous les déplacements sont en mK ( $1 \text{ mK} = 10^{-3} \text{ cm}^{-1}$ ). Pour les raies  $\lambda = 5562 \text{ \AA}$  et  $\lambda = 5570 \text{ \AA}$ , les marges d'erreur sont égales à l'écart quadratique moyen de l'ensemble des enregistrements (une centaine pour chaque raie) ; pour la raie  $\lambda = 5650 \text{ \AA}$ , le nombre d'enregistrements étant plus réduit, les marges d'erreur sont égales au double de l'écart quadratique correspondant. Nous avons effectué un grand nombre d'enregistrements pour les deux raies  $1s \rightarrow 2p$  de manière à atteindre une précision suffisante pour mettre en évidence la présence éventuelle d'un effet de volume. Si on était en présence d'effet de masse pur, les rapports  $\rho_1 = \Delta\sigma(82,80) / \Delta\sigma(84,82)$  et  $\rho_2 = \Delta\sigma(84,82) / \Delta\sigma(86,84)$  vaudraient respectivement :

$$\rho_1 = (84 \times 82) / (82 \times 80) = 1,05 \quad \text{et} \quad \rho_2 = (86 \times 84) / (84 \times 82) \approx 1,05 \quad [55].$$

Les valeurs expérimentales correspondantes sont :

$$\rho_1 = 1,15 \pm 0,04 \quad ; \quad \rho_2 = 0,97 \pm 0,03 \quad \text{pour la raie } \lambda = 5562 \text{ \AA}$$

$$\rho'_1 = 1,15 \pm 0,07 \quad ; \quad \rho'_2 = 0,98 \pm 0,07 \quad \text{pour la raie } \lambda = 5570 \text{ \AA} .$$

Ces valeurs sont incompatibles avec l'hypothèse d'un effet de masse pur et s'expliquent seulement par la présence d'un effet de volume.

Ces résultats sont en accord avec ceux obtenus par C. Bréchnac [18,52] et par H. Gerhardt et al. [53] à l'aide d'une méthode d'absorption saturée et aussi avec les mesures de D. A. Jackson [56] effectuées sur des raies infrarouges à l'aide d'un spectrographe Fabry-Perot. On trouvera une discussion détaillée de l'effet isotopique de volume pour le krypton dans la thèse de C. Bréchnac [18].

$\lambda$ (Å)		$\sigma(82) - \sigma(80)$	$\sigma(84) - \sigma(80)$	$\sigma(86) - \sigma(84)$	$\sigma(84) - \sigma(83)$
5562	ce travail	$3,18 \pm 0,08$	$2,78 \pm 0,05$	$2,88 \pm 0,05$	
	[52]	$3,13 \pm 0,03$	$2,76 \pm 0,03$	$2,86 \pm 0,03$	
5570	ce travail	$3,18 \pm 0,15$	$2,78 \pm 0,10$	$2,85 \pm 0,10$	$1,05 \pm 0,15$
	[52]	$3,15 \pm 0,03$	$2,75 \pm 0,03$	$2,87 \pm 0,03$	
	[53]	$3,18 \pm 0,03$	$2,77 \pm 0,02$	$2,85 \pm 0,02$	
5650	ce travail		$3,15 \pm 0,20$	$3,33 \pm 0,20$	

Tableau 3

Déplacements isotopiques des raies  $\lambda = 5562$  Å,  $5570$  Å et  $5650$  Å de Kr I.

Nous avons également mesuré la structure hyperfine et le déplacement isotopique de l'isotope  $^{83}\text{Kr}$  (spin nucléaire  $I=9/2$ ) pour la raie  $5570$  Å ( $1s_5 \rightarrow 2p_3$  ou  $5s[3/2]_2 \rightarrow 5p'[1/2]_1$ ). Les positions des six composantes hyperfines bien isolées de  $^{83}\text{Kr}$  ont été pointées

	Niveau $1s_5$		Niveau $2p_3$	
	ce travail	[57]	ce travail (a)	ce travail (b)
A (mK)	$-8,18 \pm 0,05$	$-8,1377 \pm 0,0001$	$7,57 \pm 0,05$	$7,63 \pm 0,05$
B (mK)	$-15,05 \pm 0,20$	$-15,081 \pm 0,002$	$1,00 \pm 0,20$	$0,91 \pm 0,20$

Tableau 4 : Constantes hyperfines des niveaux  $1s_5$  et  $2p_3$  de  $^{83}\text{Kr}$ . Pour le niveau  $2p_3$  nous avons effectué deux évaluations, l'une qui ne tient compte que de nos propres résultats (colonne (a)), l'autre obtenue en fixant les constantes A et B du niveau  $1s_5$  aux valeurs très précises obtenues par résonance magnétique [57].

(figure 20) et on en a déduit les valeurs des constantes de structure hyperfine des niveaux  $1s_5$  et  $2p_3$  par une méthode de moindres carrés (tableau 4).

Pour le niveau  $1s_5$  les valeurs obtenues peuvent être comparées aux résultats très précis des expériences de résonance magnétique de H. Kuiper [57] : on constate que l'accord est excellent. Pour le niveau  $2p_3$ , nos résultats sont en assez bon accord avec ceux de Rasmussen et Middelboe [58] mais notre précision est nettement meilleure. Le même calcul de moindres carrés nous a fourni le déplacement isotopique  $^{84}\text{Kr} - ^{83}\text{Kr}$  (Tableau 3). On constate ainsi que l'isotope 83 est plus proche de l'isotope 84, c'est-à-dire de l'isotope pair le plus lourd, que de l'isotope 82. Ce phénomène a déjà été observé par D. A. Jackson sur d'autres raies de Kr I. On ne peut pas déduire de là que l'effet de volume présenterait la même caractéristique et qu'on se trouverait donc en présence d'un phénomène inverse de l'odd-even staggering habituel, l'effet de masse jouant dans le cas présent un rôle trop important.

3° - Jet de krypton : déplacement isotopique d'une transition partant d'un niveau résonnant [29].

Le principe de l'expérience ayant été exposé précédemment (cf. §.A. I.2°), nous nous contenterons de décrire le cas particulier étudié sur le jet de krypton (figure 21). Les atomes de krypton sont excités dans le niveau  $2p_2$  en partant du niveau métastable  $1s_5$  à l'aide d'un premier laser (laser 1,  $\lambda = 5562 \overset{\circ}{\text{Å}}$ ) ; on crée ainsi une inversion de population entre ce niveau  $2p_2$  (niveau e) et le niveau  $1s_4$  (niveau r) dont la durée de vie est très courte. L'émission stimulée provoquée par le laser 2 ( $\lambda = 5871 \overset{\circ}{\text{Å}}$ ) entraîne, lorsque ce dernier est résonnant pour la transition  $2p_2 \rightarrow 1s_4$ , une diminution de la fluorescence totale émise à partir du niveau  $2p_2$ .

Les valeurs numériques des différentes constantes de relaxation de ces niveaux qui interviennent dans l'expression théorique obtenue précédemment



pour la population du niveau  $e$  (éq. (2)) peuvent être déduites des calculs de M. Aymar [36,54] :  $\Gamma_e = 30 \cdot 10^6 \text{ s}^{-1}$  ,  $\Gamma_r = 260 \cdot 10^6 \text{ s}^{-1}$  et  $\gamma_{er} = 1,4 \cdot 10^6 \text{ s}^{-1}$  . Pour une densité de puissance du laser 2 de  $30 \text{ mW/mm}^2$  on obtient  $V = 35 \cdot 10^6 \text{ s}^{-1}$  . L'équation (2) donne alors pour la diminution relative du signal de fluorescence à la résonance exacte :  $(N_e^0 - N_e^M) / N_e^0 = 27\%$  ;  $N_e^0$  (respectivement  $N_e^M$ ) est la population du niveau  $e$  (niveau  $2p_2$ ) en absence (respectivement en présence) du laser. La largeur correspondante à mi-hauteur (c'est-à-dire pour  $N_e = (N_e^0 + N_e^M) / 2$ ) du pic de résonance est de 57 MHz.

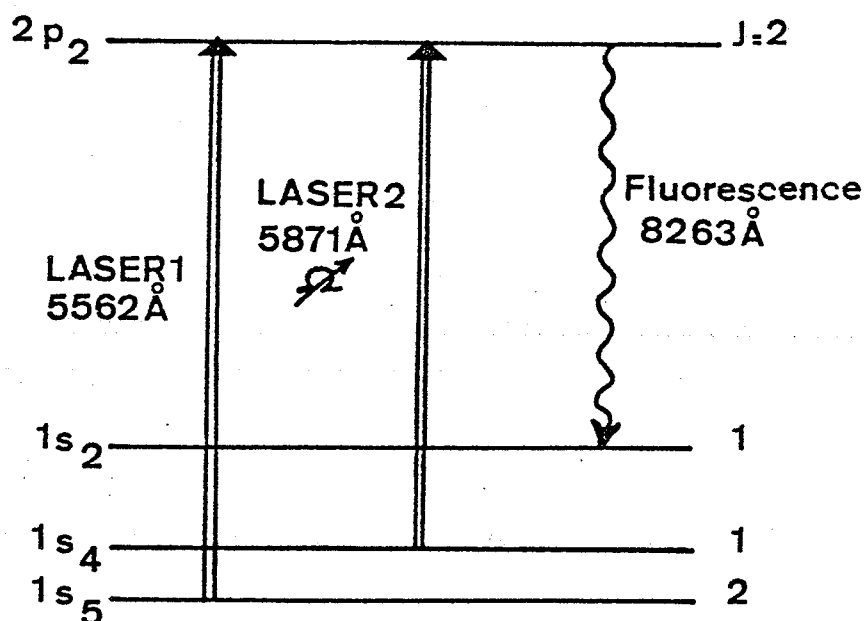


Figure 21 : Schéma des niveaux et caractéristiques des lasers pour l'étude de la transition du krypton partant du niveau résonnant  $1s_4$  .

Pour notre nouvelle expérience le jet atomique de Kr (décharge HF dans le "four") et le laser 1 (laser Liberman-Pinard [21] + sigma-mètre [37,38]) sont identiques à ceux utilisés dans l'expérience sur les raies du krypton partant de niveaux métastables (§.A.III.2°) ; le laser 2 est un laser à colorant commercial (Spectra Physics modèle 580). Dans un premier temps, pour observer le signal de résonance attendu, les deux faisceaux lasers sont colinéaires et perpendiculaires au jet atomique ; on observe la fluorescence dans la direction perpendiculaire à la fois au jet atomique et aux faisceaux lasers (figure 5). La fréquence du laser 1 est fixe et est à la résonance pour la transition  $1s_5 \rightarrow 2p_2$  de  $^{84}\text{Kr}$  ;

on observe, en fonction de la fréquence du laser 2, les variations du signal de fluorescence sur la transition  $2p_2 \rightarrow 1s_2$  ( $\lambda = 8263 \text{ \AA}$ ). Pour éviter les difficultés provenant des variations lentes d'intensité et de fréquence du laser 1, l'intensité du laser 2 est modulée mécaniquement (200 Hz) et le signal de fluorescence est détecté d'une part en continu (figure 22a $\alpha$ ) et, d'autre part, en utilisant une amplification avec détection synchrone (figure 22a $\beta$ ).

La figure 22a montre en enregistrement du signal de fluorescence obtenu en faisant varier la fréquence du laser 2 autour de la fréquence optique  $\Omega$  ( $1s_4 \rightarrow 2p_2$ ). Le laser 1 étant résonnant avec la transition  $1s_5 \rightarrow 2p_2$  de  $^{84}\text{Kr}$ , on observe un seul pic de résonance (correspondant à  $^{84}\text{Kr}$ ) pour la transition  $1s_4 \rightarrow 2p_2$ . Sur la figure 22a $\alpha$ , la diminution relative du signal à résonance est voisine de 7% ; on doit multiplier ce nombre par 2 car, à cause de la modulation, le laser n'est efficace que pendant la moitié du temps. La largeur du pic est environ 70 MHz. L'accord entre ces résultats expérimentaux et les calculs (équation (2)) est relativement satisfaisant si on se rappelle les approximations faites au §.A.I.2° et si on considère les différentes imperfections expérimentales (largeur Doppler résiduelle, jitter des lasers, ...).

Telle que nous venons de la décrire, la méthode ne peut pas être utilisée pour des mesures de déplacement isotopique car un seul isotope est excité à la fois par le laser 1 ; on obtient donc un seul pic de résonance en balayant le laser 2. On pourrait simplement de cette manière enregistrer des portions de structure hyperfine de raies correspondant à des composantes ayant même niveau supérieur, ce qui permettrait d'ailleurs d'accéder directement à la structure hyperfine du niveau inférieur (niveau résonnant  $r$ ). Pour mesurer un déplacement isotopique il faut exciter deux isotopes à la fois avec le laser 1, ce qui peut être réalisé de la manière suivante (figure 23) : le faisceau du laser 1 fait un angle  $\theta$  avec le jet et est ensuite renvoyé sur lui-même ; un atome de vitesse  $v$  est alors soumis à deux

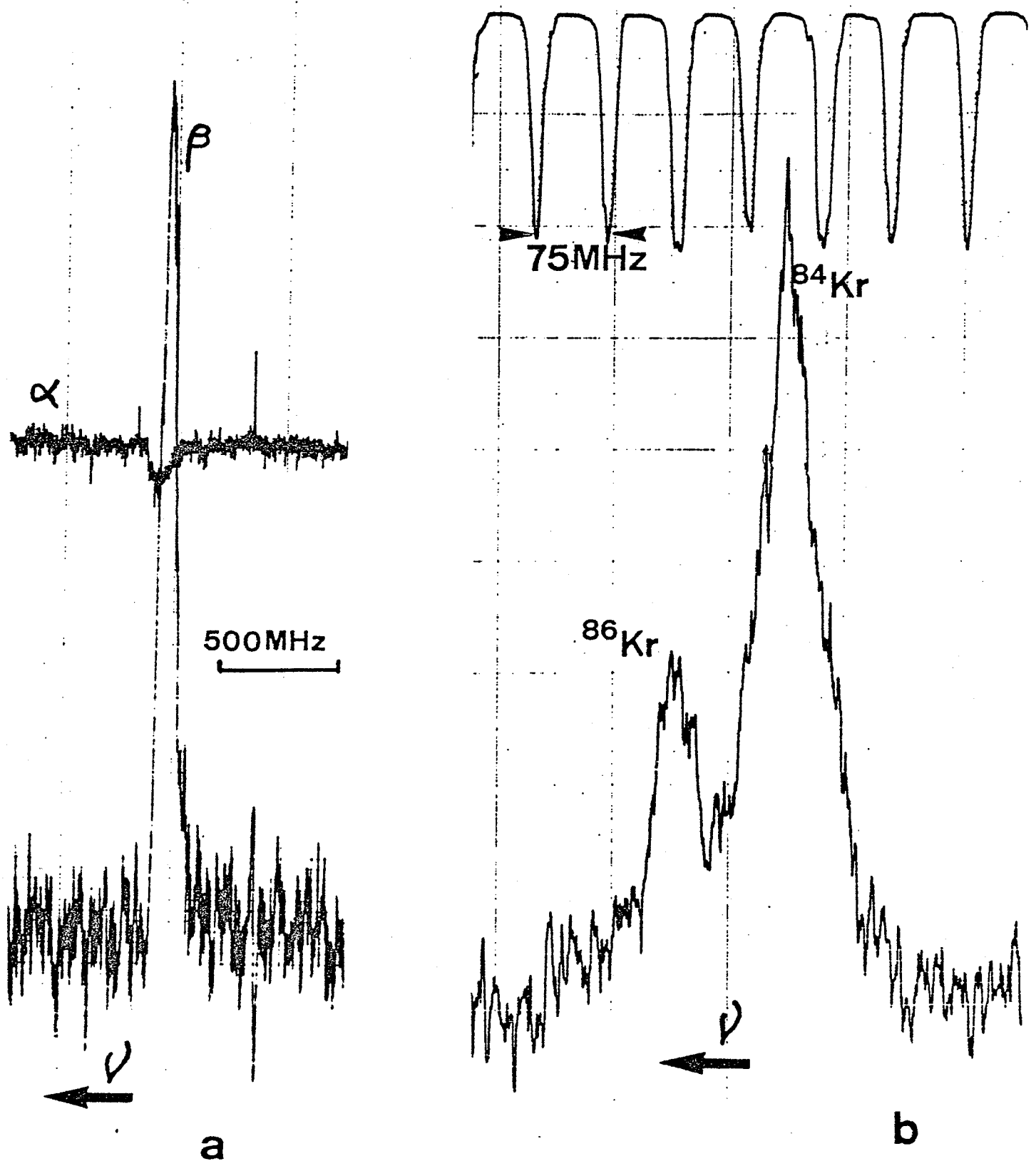
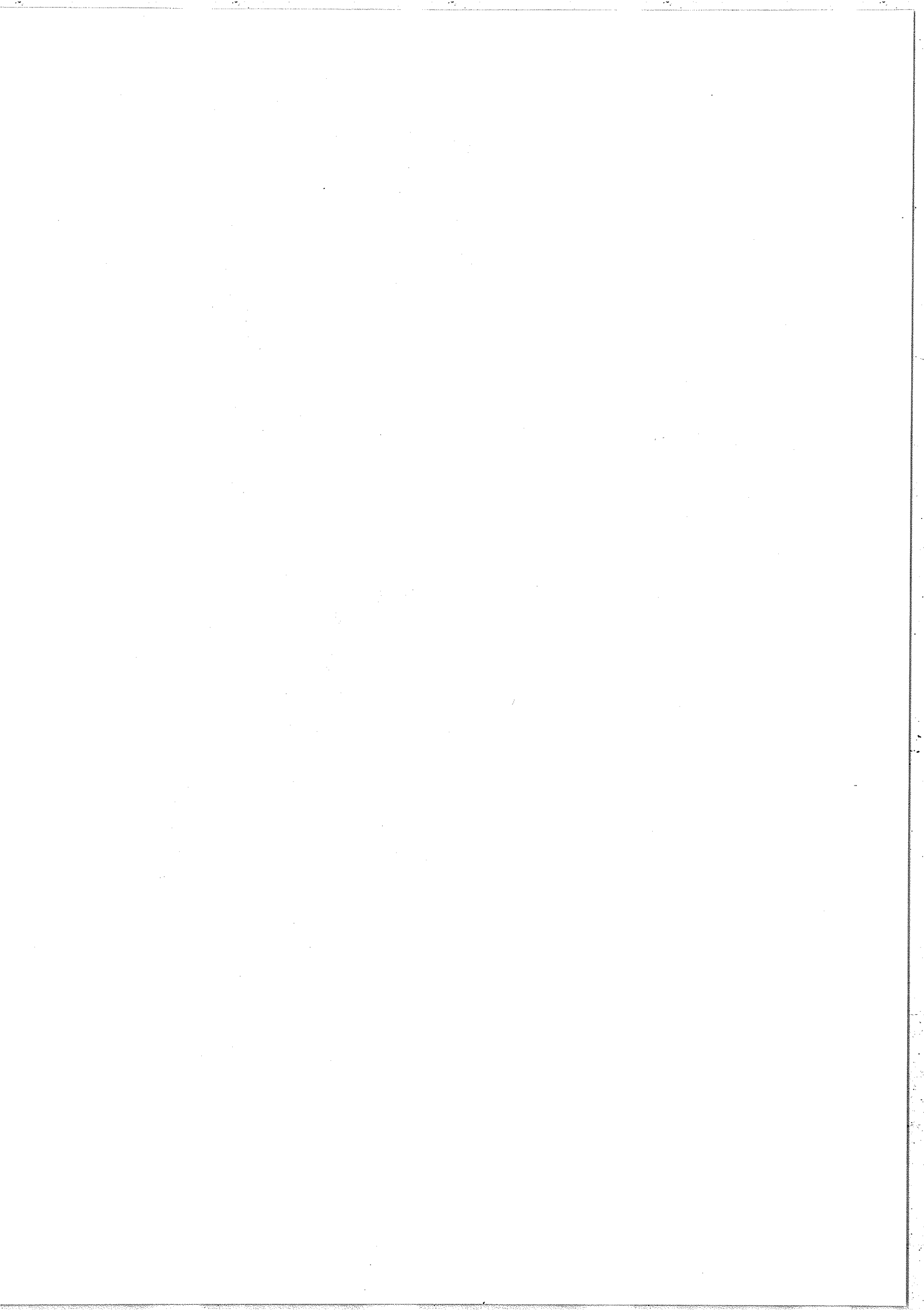


Figure 22 : Courbes de résonance obtenues pour la raie  $\lambda = 5871 \text{ \AA}$  de Kr I.  
 a) seul le  $^{84}\text{Kr}$  est excité. La courbe  $\alpha$  montre la variation de la fluorescence émise à partir du niveau excité en fonction de la fréquence du laser 2 (signal direct du PM) ; la courbe  $\beta$  montre seulement la partie de cette fluorescence qui est modifiée par la présence du laser 2 (signal de sortie de l'amplificateur à détection synchrone) ;  
 b) le  $^{84}\text{Kr}$  et le  $^{86}\text{Kr}$  sont excités simultanément pour permettre la mesure du déplacement isotopique.



radiations de nombre d'ondes  $\sigma = \sigma_1 \left(1 + \frac{v \cos \theta}{c}\right)$  et  $\sigma' = \sigma_1 \left(1 - \frac{v \cos \theta}{c}\right)$  où  $\sigma_1$  désigne le nombre d'ondes du laser 1. En ajustant  $\sigma_1$  et  $\theta$  on peut amener, grâce au déplacement de fréquence dû à l'effet Doppler, le laser en résonance avec deux isotopes différents pour les atomes ayant la vitesse moyenne  $v_m$  dans le jet. Dans l'expérience sur le krypton, l'optimisation de  $\theta$ , dont la valeur dépend à la fois de la valeur de  $v_m$  et de celle du déplacement isotopique de la transition métastable  $\rightarrow$  niveau excité, a été réalisée en observant l'intensité et l'allure du spectre d'excitation obtenu quand on balaye la fréquence du laser 1 en l'absence du laser 2. Pour le couple  $^{86}\text{Kr} - ^{84}\text{Kr}$  le déplacement isotopique de la raie  $\lambda = 5562 \text{ \AA}$  est 86 MHz (cf. A.III.2°); nous avons trouvé  $\theta = 78,5^\circ$ , cette valeur correspond à une température voisine de 160 K pour les atomes métastables dans le four (\*). Cette température semble raisonnable si on considère que le tube à décharge qui constitue le "four" du jet atomique est refroidi à l'azote liquide.

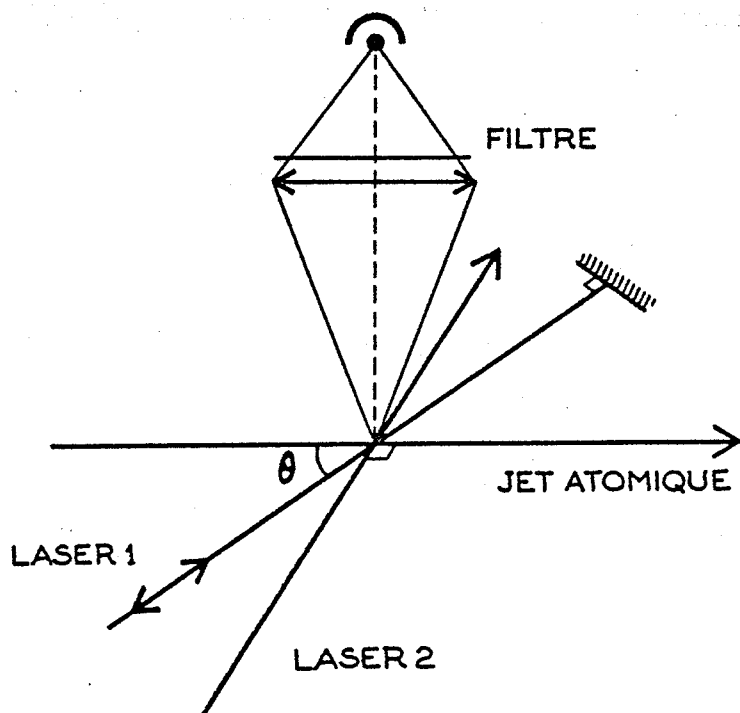


Figure 23.:

Schéma du montage expérimental utilisé pour la mesure du déplacement isotopique de la raie  $\lambda = 5871 \text{ \AA}$  de Kr I. Les deux faisceaux laser et le jet atomique sont dans le même plan; on observe la fluorescence dans une direction perpendiculaire à ce plan.

(\*) La mesure de l'angle  $\theta$  permet de calculer la vitesse moyenne  $v_m$  dans le jet, d'où l'on déduit la température dans le four.

En balayant la fréquence du laser 2, dont le faisceau est perpendiculaire au jet atomique (figure 23), on peut donc mesurer le déplacement isotopique d'une paire d'isotopes pour la raie  $r - e$  ( $1s_4 - 2p_2$  dans le cas du krypton). La figure 22b montre un enregistrement obtenu avec la paire d'isotopes  $^{86}\text{Kr} - ^{84}\text{Kr}$ . Pour les déplacements isotopiques de la raie  $\lambda = 5871 \text{ \AA}$  nous avons ainsi obtenu :

$$\delta\nu(86-84) = (118 \pm 6) \text{ MHz} ,$$

$$\delta\nu(84-82) = (108 \pm 6) \text{ MHz} .$$

Le rapport  $\rho_1 = \delta\nu(84-82) / \delta\nu(86-84)$  a une valeur mesurée de  $0,92 \pm 0,10$  alors que, pour un effet de masse pur ce rapport vaut 1,05. En combinant les déplacements isotopiques pour la raie  $\lambda = 5871 \text{ \AA}$  avec ceux mesurés pour la raie  $\lambda = 5562 \text{ \AA}$  (cf. tableau 3), nous obtenons la différence des déplacements isotopiques des deux niveaux  $\nu(1s_5) - \nu(1s_4)$ , soit  $(32 \pm 8) \text{ MHz}$  pour la paire  $^{86}\text{Kr} - ^{84}\text{Kr}$  et  $(25 \pm 8) \text{ MHz}$  pour la paire  $^{84}\text{Kr} - ^{82}\text{Kr}$ . Ces valeurs sont en excellent accord avec celles obtenues par D. A. Jackson [56] à partir de l'étude des raies infrarouges de Kr I soit respectivement 31 et 28 MHz ; elles sont probablement dues à des différences entre les effets de masse spécifique des deux niveaux  $1s_5$  et  $1s_4$  provenant d'un couplage réel différent du couplage LS pur pour la configuration  $4p^5 5s$  [55].

Nous venons de montrer qu'il est possible, avec un jet atomique, d'utiliser l'émission stimulée afin d'étudier les structures de raies ayant pour niveau inférieur un niveau résonnant de très courte durée de vie et qui n'est normalement pas peuplé dans le jet atomique. Ceci est particulièrement intéressant pour la raie du krypton que nous avons étudiée parce que les autres méthodes de spectroscopie sans effet Doppler semblent ne pas être utilisables dans ce cas [17, 52]. Des améliorations techniques seraient nécessaires pour augmenter le rapport signal sur bruit dans notre expérience. Il faudrait en particulier améliorer la stabilisation des fréquences et des intensités des lasers utilisés. Le recours à des mélanges isotopiques enrichis (mélange de deux isotopes) serait probablement nécessaire pour étudier les isotopes les plus rares.

En conclusion de ce chapitre consacré à des études de spectroscopie laser avec jet atomique de gaz rares excités, nous voudrions souligner à la fois les mérites et les difficultés d'une telle technique. Nous avons montré, dans le cas particulier des gaz rares, qu'il est possible de peupler suffisamment des niveaux métastables dans un jet atomique pour réaliser à partir de ces niveaux des expériences de spectroscopie laser. Des expériences analogues à partir de niveaux métastables du baryum et de l'ytterbium ont depuis été réalisées avec succès au Laboratoire Aimé Cotton [59]. Ces méthodes permettent d'étudier des niveaux atomiques très excités dans les conditions très favorables qui sont celles d'un jet atomique. Le pouvoir de résolution obtenu est, dans notre expérience sur le krypton par exemple, comparable à celui obtenu avec les autres méthodes de spectroscopie sans effet Doppler (par exemple l'absorption saturée). Les structures enregistrées sont exemptes des fonds gaussiens qu'on observe parfois dans la méthode d'absorption saturée et des résonances de croisement que l'on rencontre en appliquant cette méthode à l'étude des structures hyperfines (§.D., [52, 53]). On peut ainsi mesurer sans difficultés la totalité de la structure hyperfine et isotopique dans les cas très complexes comme celui du krypton sans avoir recours nécessairement à des mélanges isotopiques enrichis. Le rapport signal sur bruit est tout-à-fait convenable (cf. figures 17, 19 et 20) et la précision des mesures est limitée, dans nos expériences, non pas par l'erreur de pointé des composantes mais bien par la précision et la linéarité de l'étalonnage en nombre d'ondes du laser. Il faut toutefois souligner que la population de niveaux métastables dans le jet est très inférieure à la population du niveau fondamental ; la plupart des atomes du jet ne sont pas utilisés dans l'expérience. Les signaux obtenus sont donc relativement faibles et de grandes précautions sont nécessaires pour éliminer la lumière parasite.

Même si les résultats proprement spectroscopiques obtenus pour les gaz rares peuvent paraître un peu décevants a posteriori, le mérite principal de nos expériences utilisant un jet excité est sans aucun

doute d'ouvrir la voie à de nouvelles expériences de spectroscopie laser avec des jets atomiques. C'est ainsi que l'étude des états de Rydberg du baryum et de l'ytterbium par absorption à partir de niveaux métastables suivi d'une ionisation par un champ électrique est en cours actuellement au laboratoire [59] ; que des expériences préliminaires sont également réalisées pour produire un jet d'hydrogène atomique contenant des métastables  $2S$ , un tel jet devant permettre d'étudier certains phénomènes d'ionisation dans les états de Rydberg [60, 61], et que des études spectroscopiques sur les niveaux de Rydberg et les niveaux autoionisés des gaz rares sont d'ores et déjà possibles.



CHAPITRE B

---

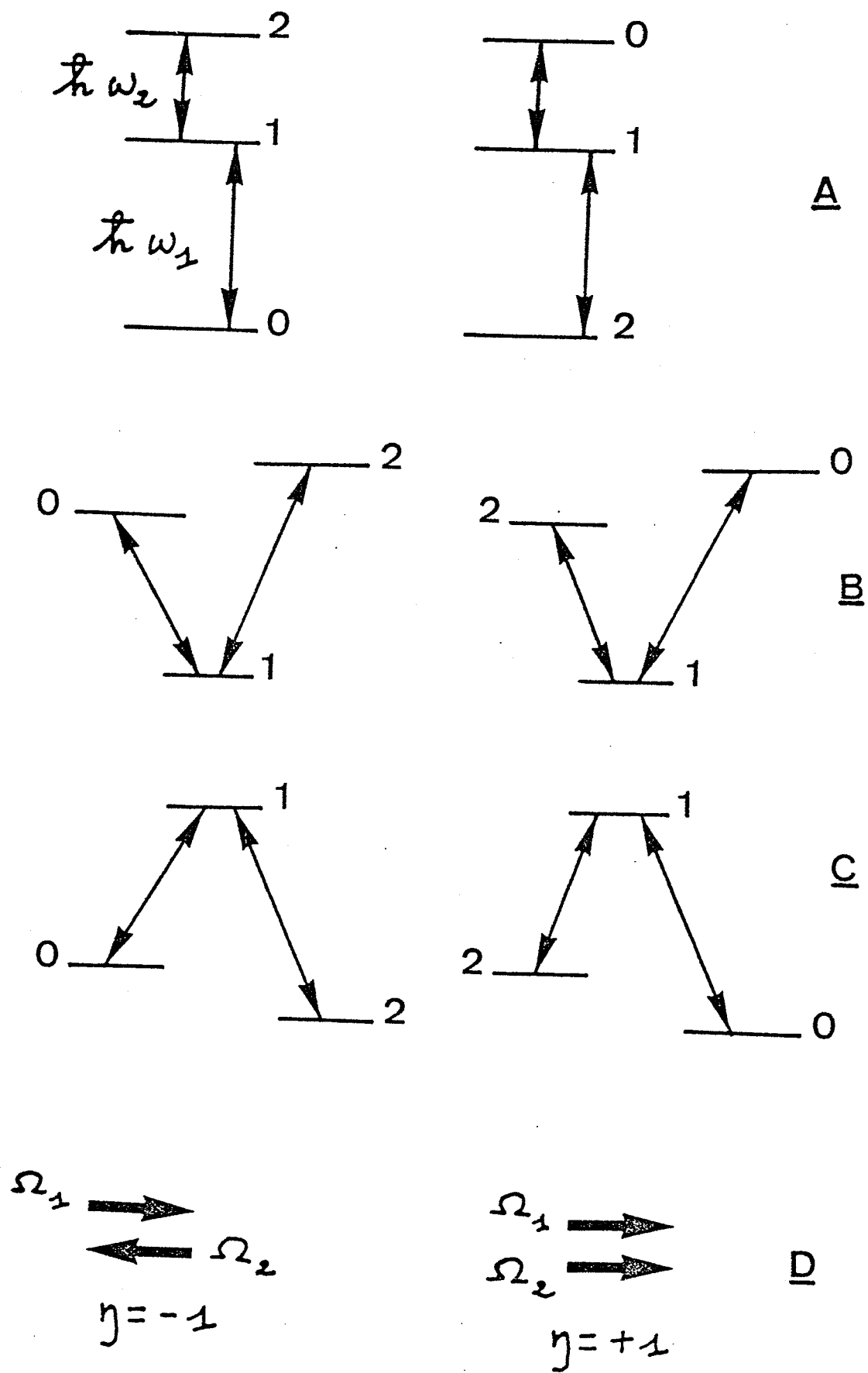


Figure 24 : Différentes dispositions possibles pour le système à trois niveaux : a) en cascade ; b) en V ; c) en V renversé ; d) direction et sens de propagation des deux lasers .

SPECTROSCOPIE SANS EFFET DOPPLER DANS LES SYSTEMES A TROIS NIVEAUX :  
AFFINEMENT DES RAIES INDUIT PAR LASER DANS UNE VAPEUR ATOMIQUE (A.L.N.)

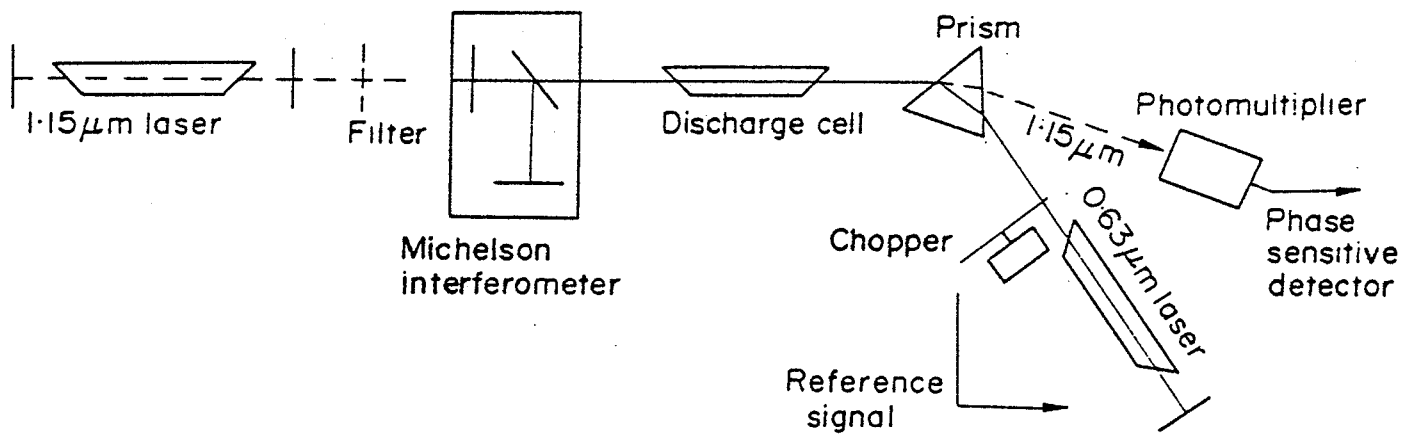
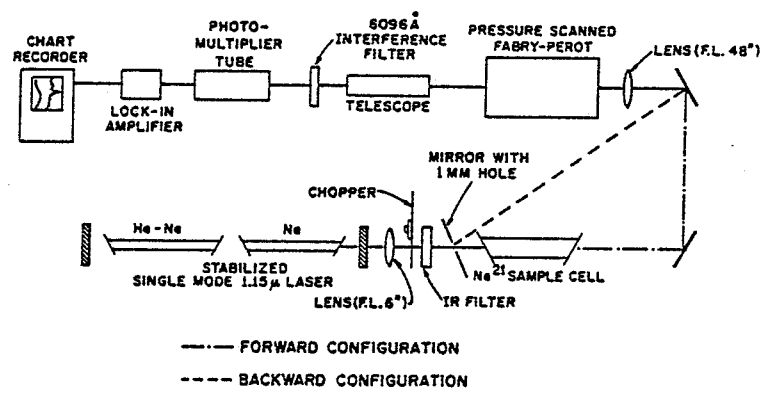
Dans ce deuxième chapitre, nous montrons que l'on peut utiliser l'interaction sélective entre des lasers monomodes quasi-résonnants et une vapeur atomique pour réaliser des expériences de spectroscopie sans effet Doppler (résolution  $\sigma/\Delta\sigma \approx 10^7$ ). Plus précisément, nous étudions un système atomique à trois niveaux (0, 1 et 2) connectés par deux transitions dipolaires permises ( $0 \leftrightarrow 1$  et  $1 \leftrightarrow 2$ ) et soumis à l'action de deux ondes laser monochromatiques se propageant dans la même direction, soit dans le même sens, soit en sens opposés ; les différentes dispositions possibles pour les trois niveaux en question sont indiquées sur la figure 24.

L'étude de tels systèmes à trois niveaux dans le cas où l'effet Doppler joue un rôle prédominant (domaine spectral visible et proche infrarouge) a débuté par des expériences où l'on observait la fluorescence émise sur une transition ayant un niveau commun avec une transition laser [62-64] (figure 25a). Des expériences utilisant deux lasers à gaz ont ensuite été réalisées par différents groupes d'expérimentateurs [65-67] (figures 25b et 25c) ; enfin, plus récemment, les lasers à colorant ont pu être utilisés dans ce type de spectroscopie sub-Doppler [68, 69]. Toutes ces méthodes n'ont jusqu'à présent fait l'objet que de quelques applications purement spectroscopiques (détermination de

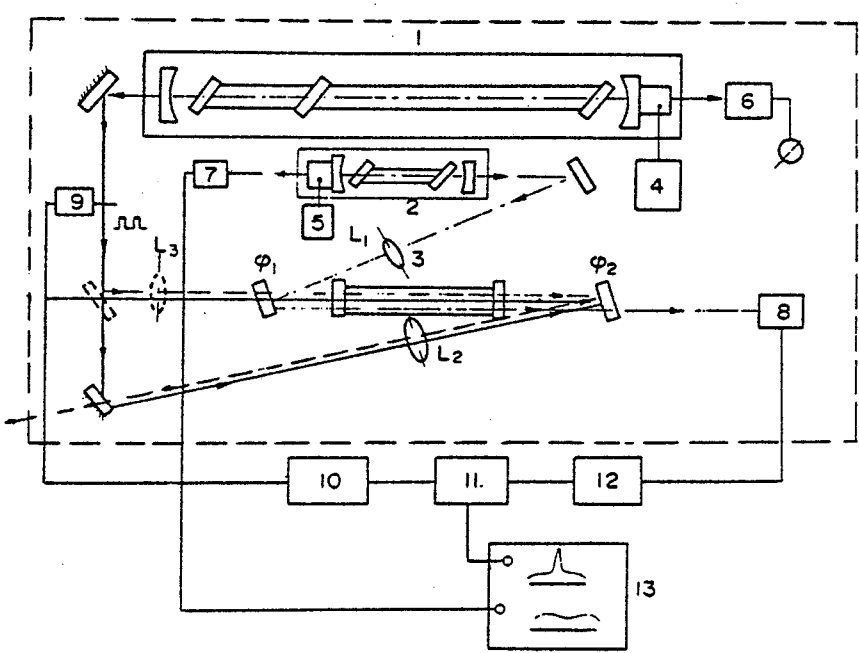
structures hyperfines ou isotopiques) [47, 49, 63, 70]. D'un point de vue théorique, les systèmes à trois niveaux ont été longuement étudiés par différents auteurs ; nous ne mentionnerons ici que les contributions importantes du groupe du M.I.T. (Feld, Javan...) [71-73] et de celui de Heidelberg (Hänsch, Toschek) [74]. Pour terminer ces quelques lignes historiques et bibliographiques, nous signalerons les importants articles de revue de Chebotayev [4, 75, 76] dans lesquels on trouvera de nombreuses références, notamment sur les travaux des auteurs soviétiques.

Dans l'exposé qui va suivre nous présentons tout d'abord une étude théorique des résonances sans effet Doppler dans les systèmes à trois niveaux. Une première approche, basée sur le modèle "Hole-burning" [77], permet de calculer la position des résonances et d'estimer leur largeur. Elle est suffisante pour envisager les applications spectroscopiques (spectroscopie de position). La seconde partie de l'étude théorique utilise le formalisme de la matrice densité et permet en plus de discuter complètement la forme et la largeur des résonances. Nous présentons ensuite l'étude expérimentale de l'affinement des raies induit par laser dans une vapeur atomique (A.L.N.) que nous avons réalisée dans le néon, soit à l'aide d'un laser He-Ne et d'un laser à colorant, soit à l'aide de deux lasers à colorant. Cette étude permet notamment des mesures de déplacements isotopiques  $^{22}\text{Ne} - ^{20}\text{Ne}$  et des mesures de structures hyperfines dans le néon 21 (spin nucléaire  $I=3/2$ ) ; les résultats de ces mesures sont donnés à la fin du chapitre.

a) "Laser-induced fluorescence line-narrowing (F.L.N.)" [47]

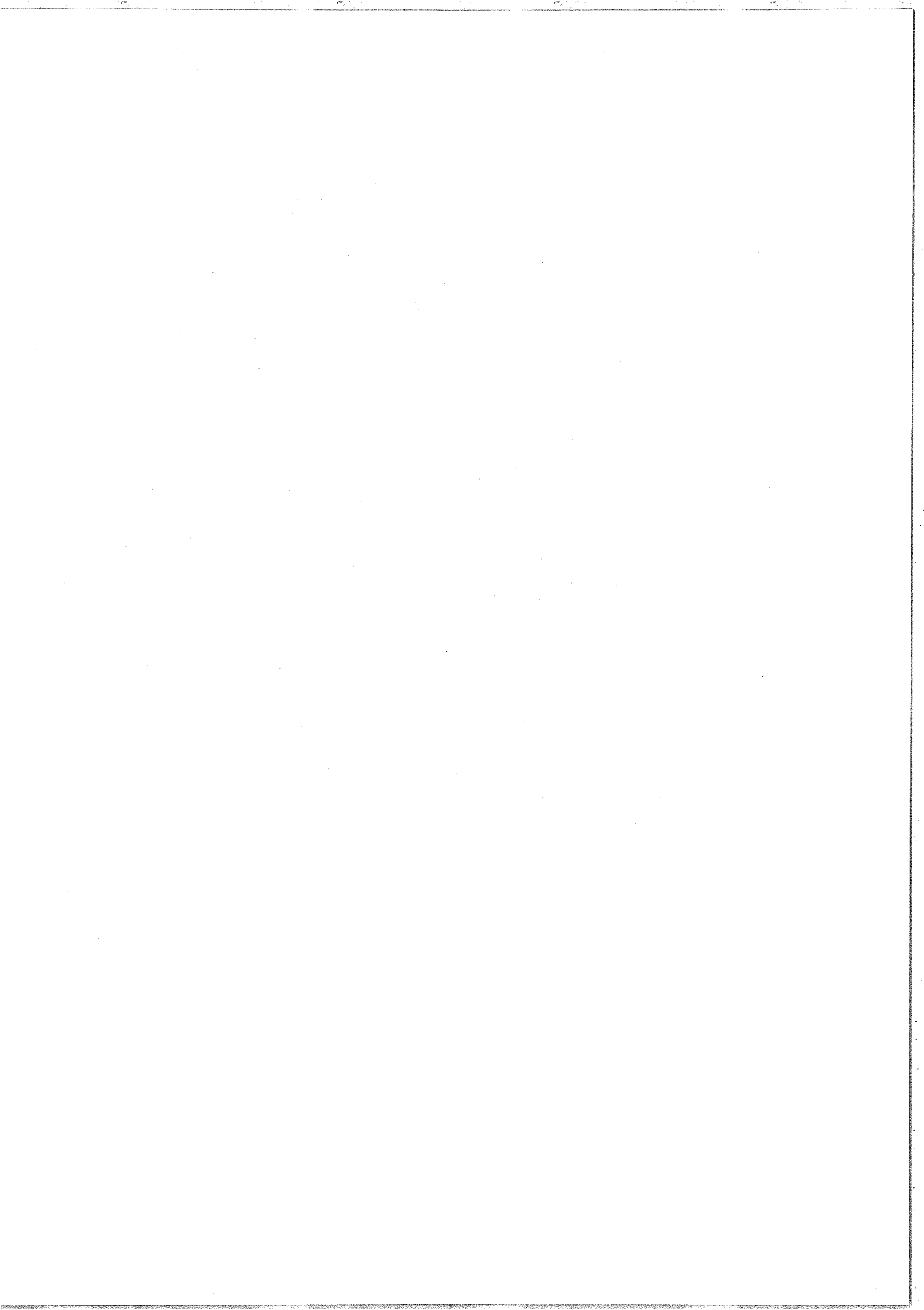


b) "Tuned laser differential spectrometry (T.D.S.)" [65]  
ou "Cross-saturation spectroscopy".



c) "Resonant stimulated Raman scattering (S.R.S.)" [67].

Figure 25 : Exemples de montages expérimentaux utilisés pour l'étude des systèmes à trois niveaux.



## I. Etude théorique.

### 1° - Modèle "Hole burning".

#### a) Existence et position des résonances.

On considère dans une cellule un ensemble d'atomes formant un gaz à la température  $T$ , chacun de ces atomes pouvant être considéré comme un système à trois niveaux du type de ceux représentés sur la figure 24. Chacun des niveaux est peuplé dans une décharge suivant différents mécanismes (excitations électroniques directes, cascades radiatives, collisions avec les atomes ou les ions, ...). Nous supposons que, pour chacun des niveaux  $i$  ( $i=0,1,2$ ), le nombre d'atomes ayant une vitesse  $v_z$  (projection de la vitesse  $\vec{v}$  sur un axe  $Oz$  donné) comprise entre  $v$

et  $(v+dv)$  est  $n_i(v)dv$  avec :  $n_i(v) = \frac{g_i}{\sqrt{\pi} v_0} e^{-\left(\frac{v}{v_0}\right)^2}$  ;  $v_0 = (2RT/M)^{\frac{1}{2}}$

est le module de la vitesse la plus probable. Les atomes sont soumis à l'action de deux ondes laser planes monochromatiques de fréquences  $\Omega_1$  et  $\Omega_2$  quasi-résonnantes respectivement avec les transitions atomiques  $0 \leftrightarrow 1$  et  $1 \leftrightarrow 2$  ; les différences d'énergie correspondant à ces transitions sont respectivement  $\hbar\omega_1$  et  $\hbar\omega_2$ . Les deux ondes électromagnétiques se propagent selon la direction  $Oz$ , les mesures algébriques des vecteurs d'ondes correspondant étant  $k_1$  et  $k_2$ . Les écarts de fréquence par rapport aux résonances atomiques sont notées respectivement :  $\delta_1 = \Omega_1 - \omega_1$  et  $\delta_2 = \Omega_2 - \omega_2$ .

Un atome de vitesse longitudinale  $v$  (projection de la vitesse selon  $Oz$ ) voit en fait dans son référentiel propre deux ondes de fréquences  $\Omega'_1 = (\omega_1 + \delta_1 - k_1 v)$  et  $\Omega'_2 = (\omega_2 + \delta_2 - k_2 v)$  à cause de l'effet Doppler. Le champ 1 (resp. 2) interagira donc de façon résonnante avec les atomes de vitesse  $v_1$  (resp.  $v_2$ ) telle que  $\Omega'_1 = \omega_1$  (resp.  $\Omega'_2 = \omega_2$ )

soit  $v_1 = \delta_1/k_1$  (resp.  $v_2 = \delta_2/k_2$ ). Du fait de la largeur homogène  $\Gamma$  (largeur naturelle augmentée des effets de collisions et de saturation) non nulle et très inférieure à la largeur Doppler  $\delta\omega_D = kv_0 \sqrt{\text{Log } 2}$ , l'interaction résonnante aura en réalité lieu avec un ensemble d'atomes ayant des vitesses longitudinales  $v$  comprises dans un domaine de largeur  $\delta v \approx \Gamma/k$  autour de la valeur  $\delta/k$  (classe de vitesse longitudinale). Si l'on fait varier  $\delta$  ( $\delta_1$  ou  $\delta_2$ ) la classe de vitesse concernée va se déplacer dans la distribution de Maxwell. Lorsque les deux lasers interagissent avec des atomes appartenant à la même classe de vitesse ( $v_1 = v_2$ ) on observera une "résonance"; la condition de résonance correspondante est :

$$\delta_2 = \frac{k_2}{k_1} \delta_1 \quad (3)$$

Nous allons maintenant discuter, sur un cas particulier, la manière dont se manifeste cette résonance. On considère pour cela le système en cascade représenté sur la figure 26. Nous supposons que nous sommes dans un cas où il existe de l'absorption sur la transition  $0 \rightarrow 1$  ( $N_0 > N_1$ ). La fréquence du laser 1 est fixe et très proche de  $\omega_1$ ; la fréquence du laser 2 peut être balayée autour de la fréquence atomique  $\omega_2$ . On observe la transmission du laser 2 (faisceau "sonde") à travers le milieu atomique et plus précisément les variations de cette transmission produites par la présence du laser 1 (faisceau "saturant"). L'interaction avec le laser 1 produit une saturation dans le système à deux niveaux (0 et 1) pour une classe de vitesse  $v_1 = \delta_1/k_1$ . On obtient donc dans la distribution de vitesse de la population du niveau 1 un pic centré autour de  $v_1$  (figure 26) dont la largeur  $\delta v_1$  est déterminée par la largeur homogène  $\Gamma_{01}$  de la transition ( $\delta v_1 \approx \Gamma_{01}/k_1$ ) et qui se superpose à la distribution de Maxwell habituelle. Le laser 2 (faisceau sonde) n'interagit, de même, qu'avec des atomes dont la vitesse est au voisinage de  $v_2 = \delta_2/k_2$  dans une bande de largeur  $\delta v_2 \approx \Gamma_{21}/k_2$  ( $\Gamma_{21}$  est la largeur homogène de la transition  $1 \leftrightarrow 2$ ). Lorsque l'on fait varier  $\delta_2$  (et par conséquent  $v_2$ ) la présence du pic dans la distribution de vitesse  $N_1(v)$  du niveau 1 se traduira à la résonance ( $v_2 = v_1$  ou  $\delta_2 = \delta_1 k_2/k_1$ ) par une augmentation de



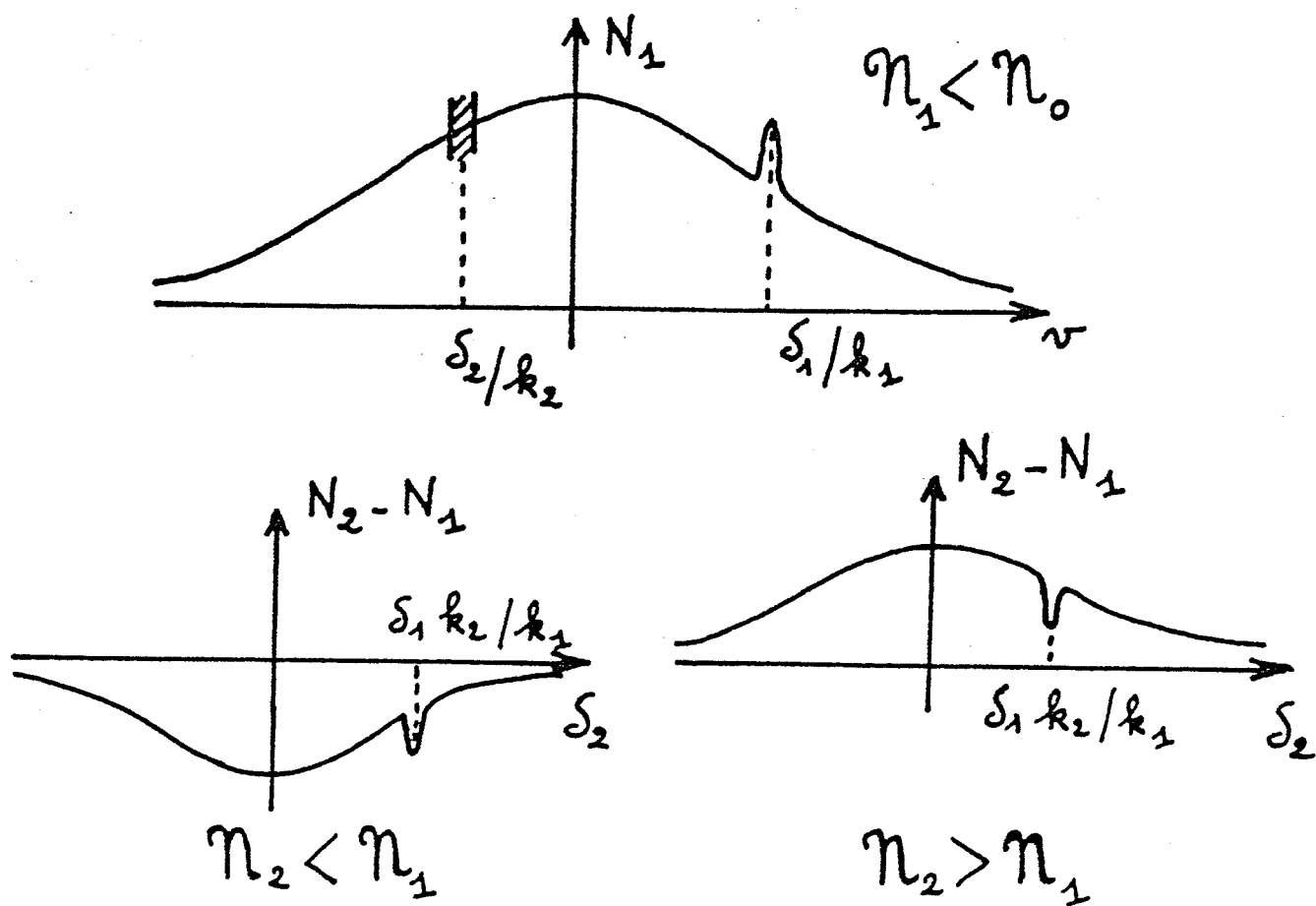
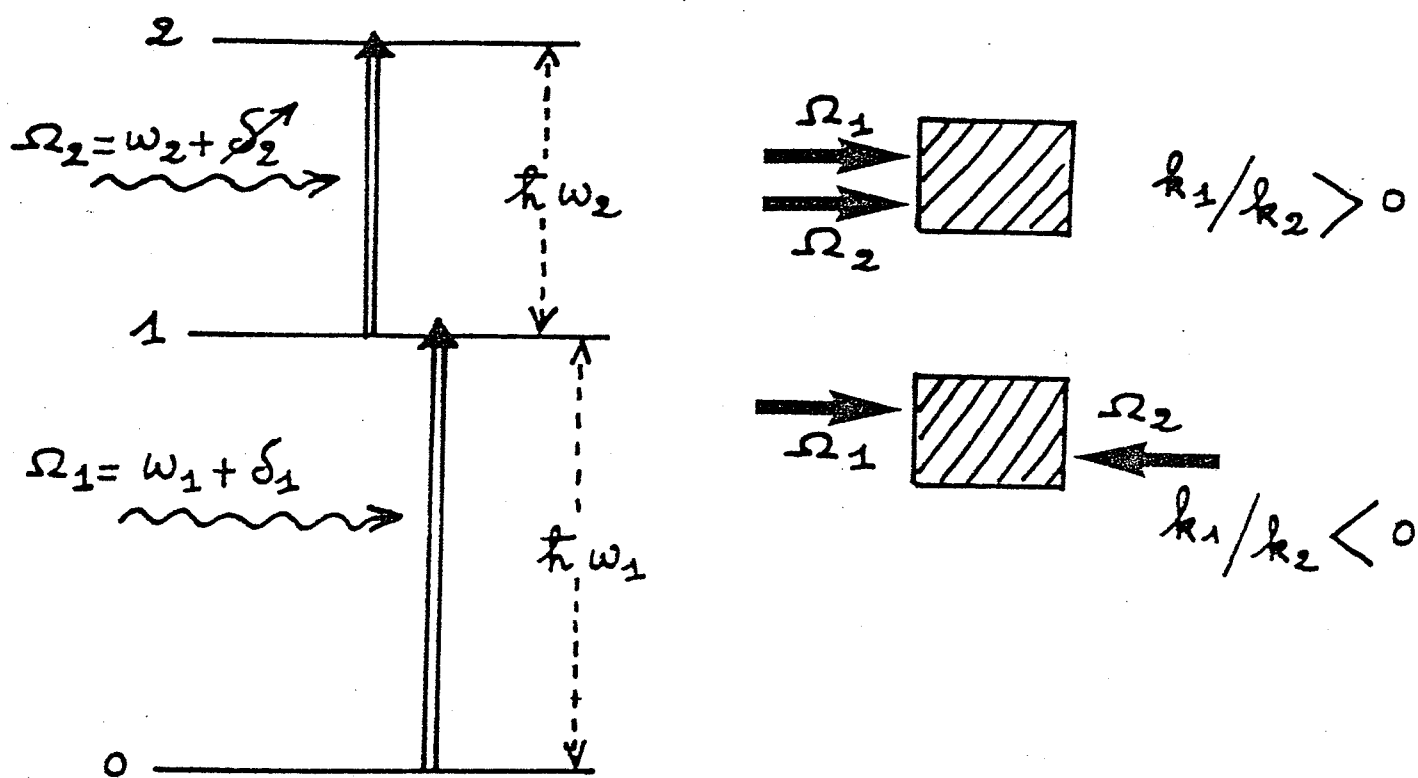
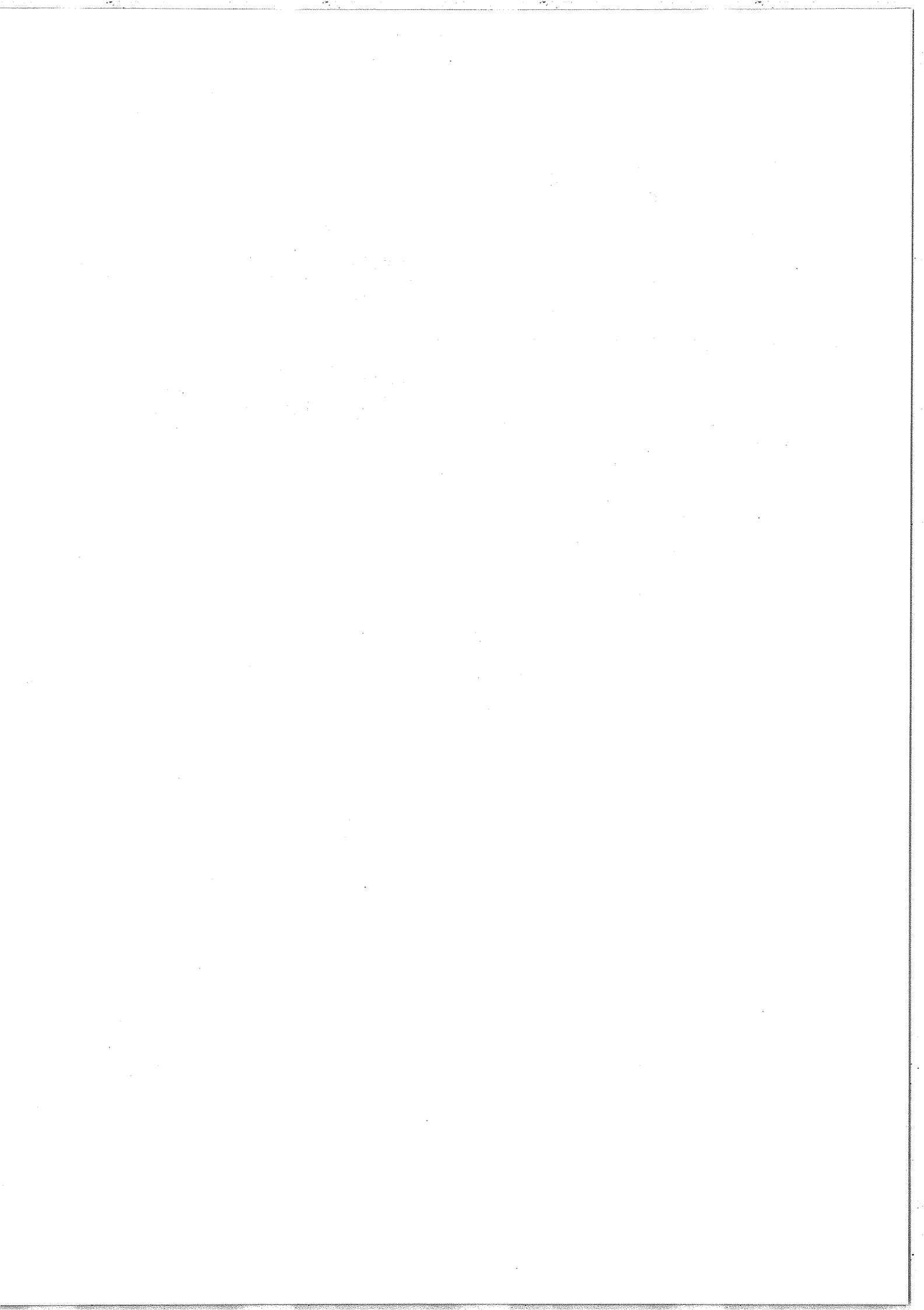


Figure 26 : Illustration, sur un cas particulier, de la manière dont se manifestent les résonances dans les systèmes à trois niveaux.



l'absorption (ou une diminution de l'amplification) pour le faisceau 2. On obtiendra donc, superposé à la courbe d'absorption gaussienne de largeur  $\delta\omega_D$ , un pic (négatif dans notre cas particulier) beaucoup plus fin dont la largeur est déterminée par les largeurs homogènes des deux transitions (figure 26). En s'arrangeant pour n'observer que les modifications de la transmission (par modulation du faisceau saturant et détection synchrone) on observera des résonances beaucoup plus étroites que la largeur Doppler qui peuvent permettre, dans les conditions que nous allons préciser maintenant, des mesures spectroscopiques à haute résolution.

Revenons maintenant à un système à trois niveaux quelconque (figure 24) pour lequel la condition de résonance s'écrit :  $\delta_2/k_2 = \delta_1/k_1$ , ou encore  $(\Omega_2 - \omega_2) = \left(\frac{k_2}{k_1}\right) (\Omega_1 - \omega_1)$ . Les lasers sont quasi-résonnants de sorte que  $\Omega$  est toujours très proche de  $\omega$ ;  $\delta = (\Omega - \omega)$  est au plus de l'ordre de la largeur Doppler, de sorte que  $\delta/\omega \approx 10^{-6}$ . On pourra donc, dans la condition de résonance, remplacer  $\left|\frac{k_2}{k_1}\right| = \frac{\Omega_2}{\Omega_1}$  par  $\frac{\omega_2}{\omega_1}$  et obtenir :  $(\Omega_2 - \omega_2) = \eta \frac{\omega_2}{\omega_1} (\Omega_1 - \omega_1)$ ;  $\eta = +1$  lorsque les deux lasers se propagent dans le même sens et  $\eta = -1$  lorsque les deux lasers se propagent en sens inverse ( $\eta = \text{signe}(k_2/k_1)$ ). Si la fréquence du laser 1 est fixe, on trouvera donc la résonance pour :

$$\Omega_2 = \Omega_R = \omega_2 + \eta \frac{\omega_2}{\omega_1} (\Omega_1 - \omega_1) .$$

Dans le cas où les transitions atomiques  $0 \leftrightarrow 1$  et  $1 \leftrightarrow 2$  présentent des structures serrées (de l'ordre de la largeur Doppler ou inférieures à celle-ci) on obtiendra en fait toute une série de systèmes à trois niveaux identiques à celui étudié précédemment. La séparation des deux résonances dues à une paire  $(i, j)$  de systèmes à trois niveaux est :

$$\Delta\Omega_R^{ij} = \Omega_R(i) - \Omega_R(j) = [\omega_2(i) - \omega_2(j)] - \eta \frac{\omega_2}{\omega_1} [\omega_1(i) - \omega_1(j)] \quad (4)$$

Cette expression est indépendante de  $\Omega_1$ , c'est-à-dire indépendante de

la position du laser fixe dans le profil gaussien. L'écart  $\Delta\Omega_R^{ij}$  entre les deux résonances est une combinaison linéaire des écarts d'énergie correspondants à chacune des deux transitions ; en mesurant  $\Delta\Omega_R^{ij}$  successivement dans le cas où les lasers se propagent dans le même sens ( $\eta = +1$ ) et dans le cas où les lasers se propagent en sens opposés ( $\eta = -1$ ), on peut déduire à la fois la structure de la transition 1 et celle de la transition 2.

b) Calcul sur les populations.

On peut obtenir une première approximation pour la forme et la largeur du signal de résonance donné par le système à trois niveaux en effectuant un calcul élémentaire de saturation sur les populations. Pour cela on considère d'abord le système à deux niveaux (0 et 1) soumis à l'action du laser saturant et on calcule la population du niveau 1 modifiée par cette interaction. On suppose que la population ainsi calculée n'est pas modifiée par le faisceau sonde et on en déduit l'expression de l'absorption du faisceau sonde en présence du laser saturant.

Les principales notations sont illustrées sur la figure 27 :

$\Gamma_i$  ( $i=0,1,2$ ) désigne le taux de relaxation total du niveau  $i$  ;  
 $\gamma_{ij}$  ( $i \neq j$ ) est la probabilité par unité de temps d'émission spontanée de  $i$  vers  $j$  ( $\gamma_{ij} = 0$  si l'énergie  $E_i$  du niveau  $i$  est inférieure à l'énergie  $E_j$  du niveau  $j$ ). En l'absence du champ saturant et du champ sonde la densité de population du niveau  $i$  est, pour une classe

de vitesse  $v$ ,  $n_i(v) = \frac{\mathcal{N}_i}{\sqrt{\pi} v_0} e^{-\left(\frac{v}{v_0}\right)^2}$ . Nous désignons par  $W_1(v)$

la probabilité par unité de temps pour qu'un atome de vitesse  $v$  subisse une transition  $0 \leftrightarrow 1$  induite par le champ 1 :

$$W_1(v) = G_1 \times \frac{\Gamma_{01}^2}{\Gamma_{01}^2 + (\delta_1 - k_1 v)^2} \quad \text{avec} \quad G_1 = \frac{1}{2\Gamma_{01}} \left( \frac{\mathcal{P}_1 \xi_1}{\pi} \right)^2$$

$\Gamma_{01}$  est la demi-largeur homogène de la transition,  $\mathcal{P}_1$  est l'élément

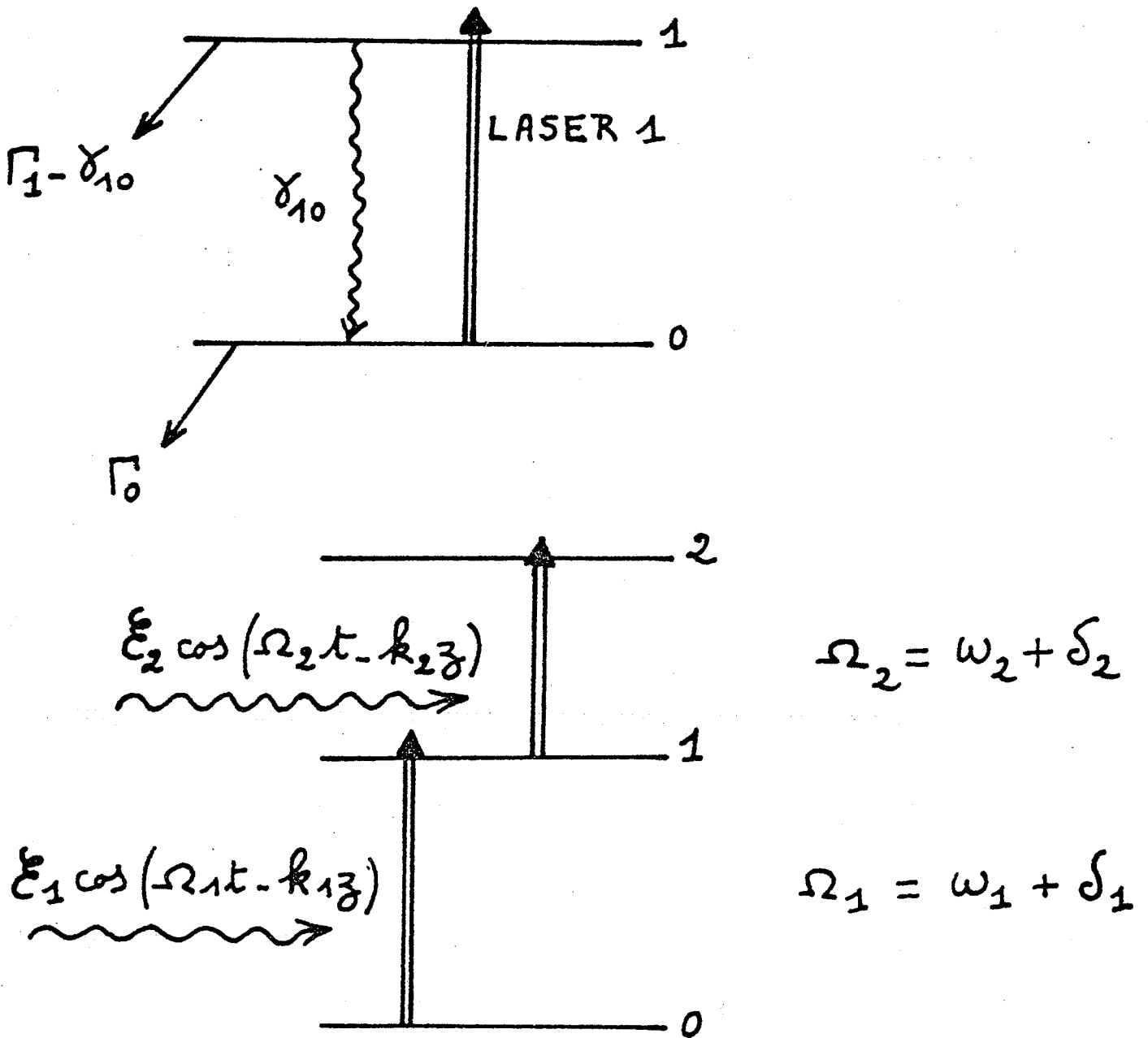


Figure 27 : Illustration des principales caractéristiques du système utilisé dans le calcul sur les populations.

de matrice du dipole électrique pour la transition et  $\mathcal{E}_1$  est l'amplitude du champ électrique de l'onde 1 .

Les équations d'évolution des densités de population  $N_0$  et  $N_1$  des niveaux 0 et 1 s'écrivent, pour une classe de vitesse  $v$  donnée :

$$\begin{cases} \dot{N}_0 = \gamma_{10}(N_1 - n_1) + W_1(N_1 - N_0) - \Gamma_0(N_0 - n_0) \\ \dot{N}_1 = \gamma_{01}(N_0 - n_0) + W_1(N_0 - N_1) - \Gamma_1(N_1 - n_1) \end{cases} .$$

La résolution de ce système d'équations en régime stationnaire ( $\dot{N}_1 = \dot{N}_0 = 0$ ) donne immédiatement pour la population du niveau 1 :

$$N_1 - n_1 = (n_0 - n_1) \left(1 - \frac{\gamma_{01}}{\Gamma_0}\right) \frac{\Gamma_1}{\Gamma_1} \frac{x \Gamma_{01}^2}{\Gamma_{01}^2 (1+x) + (\delta_1 - k_1 v)^2} \quad (5)$$

Avec :

$$\frac{1}{\Gamma} = \frac{1}{\Gamma_0} + \frac{1}{\Gamma_1} - \frac{\gamma_{01} + \gamma_{10}}{\Gamma_0 \Gamma_1} ; \quad x = \frac{G_1}{\Gamma} = \frac{\mathcal{P}_1^2 \xi_1^2}{2\Gamma_{01} \Gamma \pi^2} \quad \left( \begin{array}{c} \text{paramètre} \\ \text{de} \\ \text{saturation} \end{array} \right)$$

$$n_1 = \mathcal{N}_1 (\sqrt{\pi} v_0)^{-1} e^{-\left(\frac{v}{v_0}\right)^2} ; \quad (n_0 - n_1) = (\mathcal{N}_0 - \mathcal{N}_1) (\sqrt{\pi} v_0)^{-1} e^{-\left(\frac{v}{v_0}\right)^2} .$$

L'expression (5) fait clairement apparaître la modification de la répartition des vitesses dans le niveau 1 sous l'action du laser saturant. Elle se présente sous forme d'un pic (si  $\mathcal{N}_0 > \mathcal{N}_1$ ) à profil de Lorentz centré en  $v_1 = \delta_1/k_1$  et de largeur  $\delta v_1 = 2\Gamma_{01} \sqrt{1+x}/|k_1|$ . Il s'agit là d'un résultat bien connu et longuement discuté à propos de l'absorption saturée [78].

Passons maintenant au calcul de l'absorption subie par le laser sonde, quasi-résonnant avec la transition  $1 \leftrightarrow 2$ . Nous désignons par  $W_2(v)$  la probabilité par unité de temps pour qu'un atome de vitesse  $v$  subisse une transition  $1 \leftrightarrow 2$  induite par le champ 2 ;

$$W_2(v) = G_2 \times \frac{\Gamma_{12}^2}{\Gamma_{12}^2 + (\delta_2 - k_2 v)^2} .$$

La puissance totale perdue par le laser 2 est :

$$\Delta P = \epsilon_2 \pi \omega_2 \int W_2(v) \{N_1(v) - N_2(v)\} dv$$

$$\epsilon_2 = \text{signe} (E_2 - E_1) .$$

Compte tenu de (5) et de  $N_2 = n_2 = \mathcal{N}_2 (\sqrt{\pi} v_0)^{-1} e^{-\left(\frac{v}{v_0}\right)^2}$  (nous supposons que la population du niveau 2 n'est pas modifiée par le faisceau sonde), on peut écrire :

$$\Delta P = \varepsilon_2 G_2 \pi \omega_2 (\sqrt{\pi} v_0)^{-1} \left\{ (\mathcal{N}_1 - \mathcal{N}_2) \int \frac{\Gamma_{12}^2}{\Gamma_{12}^2 + (\delta_2 - k_2 v)^2} \times e^{-\left(\frac{v}{v_0}\right)^2} dv \right. \\ \left. + (\mathcal{N}_0 - \mathcal{N}_1) \left(1 - \frac{\gamma_{01}}{\Gamma_0}\right) \frac{\Gamma}{\Gamma_1} \int \frac{\chi \Gamma_{01}^2}{\Gamma_{01}^2(1+\chi) + (\delta_1 - k_1 v)^2} \times \frac{\Gamma_{12}^2}{\Gamma_{12}^2 + (\delta_2 - k_2 v)^2} \times e^{-\left(\frac{v}{v_0}\right)^2} dv \right\} \quad (6)$$

Le premier terme de l'expression (6) représente l'absorption sur le faisceau sonde en absence du laser saturant et le second terme est la modification de cette absorption produite par le faisceau saturant.

Les intégrales sur la vitesse se calculent aisément (intégration sur un contour dans le plan complexe) dans la limite des très grandes largeurs Doppler ( $\delta \omega_D \gg \Gamma$ ) et on obtient :

$$\alpha_{12}/\alpha_0 = e^{-\left(\frac{\delta_2}{k_2 v_0}\right)^2} \left\{ 1 + \frac{\mathcal{N}_0 - \mathcal{N}_1}{\mathcal{N}_1 - \mathcal{N}_2} \times \frac{|k_2|}{2|k_1|} \times \frac{\chi}{\sqrt{1+\chi}} \times \left(1 - \frac{\gamma_{01}}{\Gamma_0}\right) \times \left(\frac{2\Gamma_{01} \Gamma}{\Gamma_1 \Gamma_0}\right) \right. \\ \left. \times \frac{\Gamma_+ + \Gamma_0}{\left(\delta_2 - \frac{k_2}{k_1} \delta_1\right)^2 + \Gamma_+^2} \right\} \quad (7)$$

Avec  $\Gamma_+ = \Gamma_{12} + \frac{|k_2|}{|k_1|} \sqrt{1+\chi} \Gamma_{10}$  .

$\alpha_{12}$  est le coefficient d'absorption pour le laser sonde en présence du laser saturant et  $\alpha_0$  est le coefficient d'absorption du même laser, au centre du profil ( $\delta_2=0$ ) et en l'absence du laser saturant ( $\chi=0$ ) .

Si l'on fait  $\gamma_{01}=0$  (cas où le niveau 0 est au-dessus du niveau 1 en énergie :  $E_0 > E_1$  ; ou bien cas où on néglige l'émission spontanée si

$E_1 > E_0$ ) et  $\Gamma_{01} = \left(\frac{\Gamma_0 + \Gamma_1}{2}\right)$  (pas de collisions déphasantes), le fac-

teur  $\left(1 - \frac{\gamma_{01}}{\Gamma_0}\right) \left(\frac{2\Gamma_{01} \Gamma}{\Gamma_1 \Gamma_0}\right)$  devient égal à 1 et l'expression (6) est alors

identique à celle obtenue par Chebotaev (Référence [76], p. 205).

Le second terme de (5) donne pour le signal de résonance du système à trois niveaux une forme de Lorentz de largeur  $\Delta\delta_2 = 2\Gamma_+$  et centrée en  $\delta_2 = k_2/k_1 \delta_1$ . On retrouve bien le résultat du paragraphe précédent pour ce qui concerne la position de la résonance (éq. (3)). Quant à la largeur obtenue à la limite où  $\chi \ll 1$  (saturation très faible), elle correspond à ce que l'on obtient par convolution de deux formes de Lorentz dont les largeurs respectives sont les largeurs homogènes de chacune des deux transitions si l'on tient compte du facteur d'échelle sur les fréquences (lié au fait que le déplacement Doppler est proportionnel au vecteur d'onde  $k$ ).

c) Anisotropie des résonances.

Le calcul sur les populations ne fait pas apparaître de variation de la forme des résonances lié au sens relatif de propagation des deux lasers. Ce calcul ne fait intervenir que le processus "à deux étages" connectant les niveaux 0 et 2 (création d'une population dans le niveau 1) et ignore complètement les processus "à 2 photons" (création d'une cohérence optique entre les 2 niveaux 0 et 2). Nous allons montrer que ces derniers conduisent à une anisotropie des signaux de résonance.

La transition à deux étages implique une double condition de résonance :

$$\begin{cases} \delta_1 - k_1 v = 0 \\ \delta_2 - k_2 v = 0 \end{cases} \quad (8)$$

On obtient une seule classe de vitesse  $v$  satisfaisant à cette double condition. La condition de résonance pour la transition à deux photons est beaucoup moins sévère et s'écrit :  $(\delta_1 - k_1 v) + \varepsilon (\delta_2 - k_2 v) = 0$  ( $\varepsilon = +1$  pour une cascade,  $\varepsilon = -1$  pour un système en  $V$  ou en  $V$  renversé (figure 24)) ou encore :

$$\begin{cases} (\delta_1 + \varepsilon \delta_2) - k_1 v (1 - S) = 0 \\ S = -\varepsilon k_2/k_1 \end{cases} \quad (9)$$



Lorsque la double condition (8) est satisfaite on a aussi résonance pour la transition à deux photons ; dans ce cas les deux processus sont complètement indiscernables. La condition de résonance (9) montre immédiatement que l'effet Doppler qui affecte le processus à deux photons est différent suivant que  $S$  est positif ou négatif (la valeur absolue du coefficient de  $v$  est plus grande pour  $S < 0$  que pour  $S > 0$ ) c'est-à-dire, pour un système à trois niveaux donné, suivant le sens relatif de propagation des deux lasers. Après addition des contributions des différentes classes de vitesse, le signal de résonance sera donc différent selon que les deux lasers se propagent dans le même sens ( $k_2/k_1 > 0$ ) ou en sens opposé ( $k_2/k_1 < 0$ ). De nombreux auteurs se sont intéressés, tant du point de vue expérimental que théorique, à cette anisotropie dans la largeur et la forme des résonances données par les systèmes à trois niveaux [64, 79-81]. Nous retrouverons bien sûr cette anisotropie avec le calcul utilisant la matrice densité.

## 2° - Calcul utilisant la matrice densité.

Dans le but de tenir compte des cohérences optiques induites par les lasers et de calculer plus correctement la forme des raies de résonance, nous nous proposons maintenant d'écrire et de résoudre les équations d'évolution de la matrice densité pour notre ensemble d'atomes à trois niveaux soumis à deux champs électromagnétiques quasi-résonnants (équations de Bloch optiques). Les équations sont tout d'abord écrites dans l'approximation semi-classique (atome quantifié + champs classiques) pour un système à trois niveaux quelconque et pour des atomes au repos. On résout ensuite les équations dans l'approximation du 1er ordre par rapport au champ sonde et dans l'ordre de perturbation le plus bas par rapport au champ saturant où le signal apparaît. On prend ensuite en compte les effets liés au mouvement des atomes (effet Doppler) et on calcule la forme des résonances données par les systèmes à trois niveaux en ajoutant la contribution des différentes classes de vitesse.

## a) Equations d'évolution du système atome + champ.

Les notations utilisées, similaires à celles de Feneuille et Schweighofer [82], sont données sur la figure 28 pour le cas particulier d'une cascade mais sont très facilement généralisables aux autres dispositions pour les niveaux. On considère un système à trois niveaux non-dégénérés 0, 1 et 2 et on désigne par  $E_i$  ( $i=0,1,2$ ) l'énergie du niveau  $i$ . On utilise la convention de signe suivante :  $\varepsilon_1 = \text{signe}(E_1 - E_0)$  et  $\varepsilon_2 = \text{signe}(E_2 - E_1)$ . Le niveau 1 est toujours le niveau commun aux deux transitions permises de fréquences respectives  $\omega_{10}$  et  $\omega_{21}$ ; nous avons donc :

$$(E_1 - E_0) = \varepsilon_1 \pi \omega_{10} \quad \text{et} \quad (E_2 - E_1) = \varepsilon_2 \pi \omega_{21} .$$

Nous considérons seulement des transitions dipolaires électriques, de sorte que la transition  $0 \leftrightarrow 2$  est interdite pour des raisons de parité. Par souci de généralité, les probabilités par unité de temps pour l'émission spontanée sont écrites  $\gamma_{ij}$  ( $i \neq j$ ) pour la transition  $i \rightarrow j$  et on utilise les conventions suivantes :  $\gamma_{ij} = 0$  pour  $E_i - E_j < 0$ ;  $\gamma_{20} = \gamma_{02} = 0$  (sur la figure 28 :  $\gamma_{12} = \gamma_{01} = 0$ ).

On désigne par  $\Gamma_i$  ( $i=0,1,2$ ) le taux de relaxation total du niveau  $i$ ; cette relaxation est due, d'une part à l'émission spontanée vers tous les autres niveaux et, d'autre part, aux collisions (quenching).

On désigne par  $\Gamma_{ij}$  ( $i \neq j$ ) le taux de relaxation correspondant pour

la cohérence optique  $\rho_{ij}$ ; nous avons  $\Gamma_{ij} > \frac{\Gamma_i + \Gamma_j}{2}$  et  $\Gamma_{ij} = \Gamma_{ji}$ .

Les niveaux 0, 1 et 2 sont peuplés par différents mécanismes (collisions atomiques, ioniques et électroniques, émission spontanée à partir de niveaux plus excités, etc...) et on désigne par  $\Lambda_i$  le nombre d'atomes arrivant dans le niveau  $i$  par unité de temps.

On suppose que l'échantillon étudié est optiquement mince de sorte que les modifications d'amplitudes des champs sonde et saturant après traversée du milieu atomique seront très faibles. De plus, toutes les grandeurs caractérisant le peuplement et la relaxation du système à

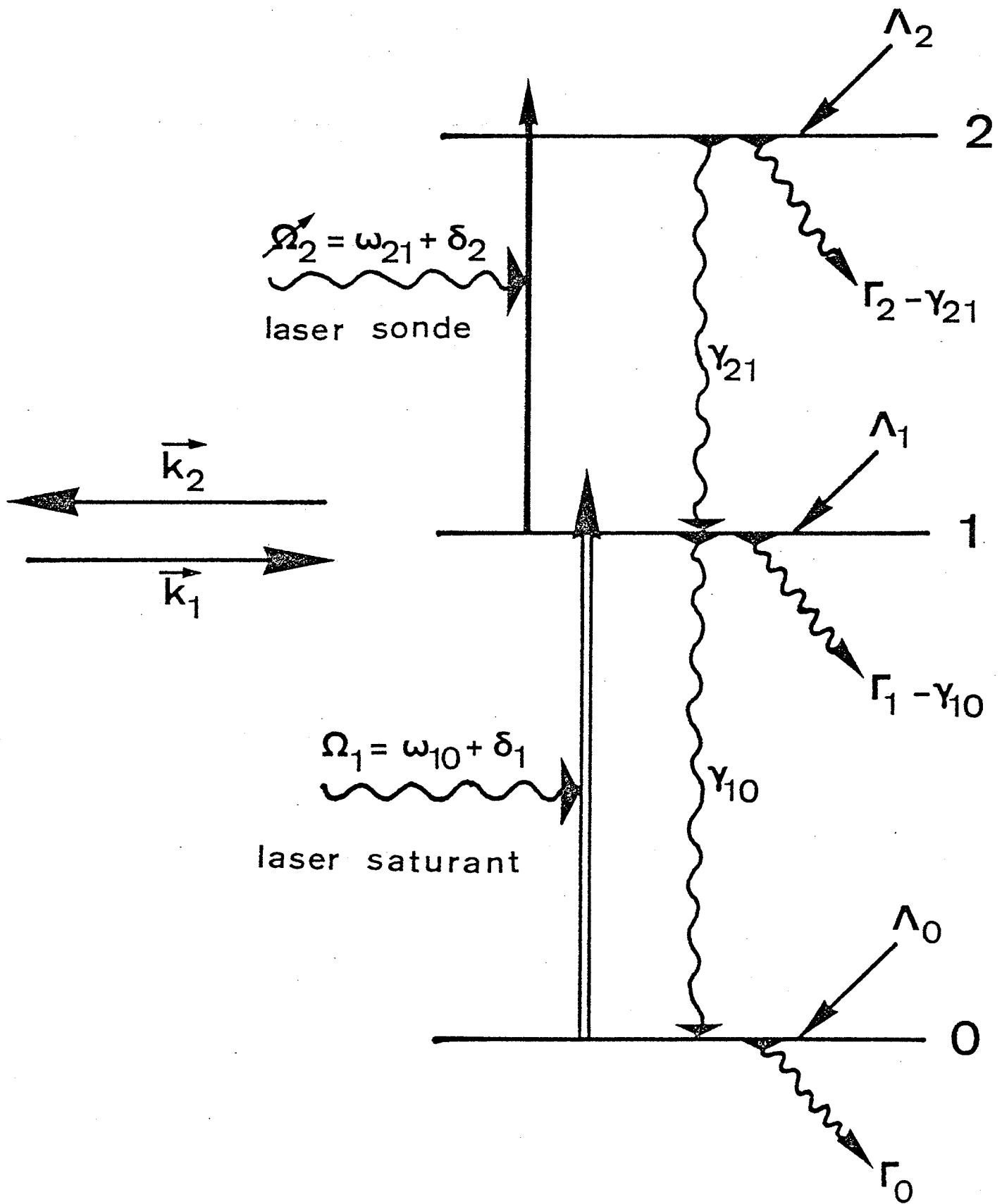
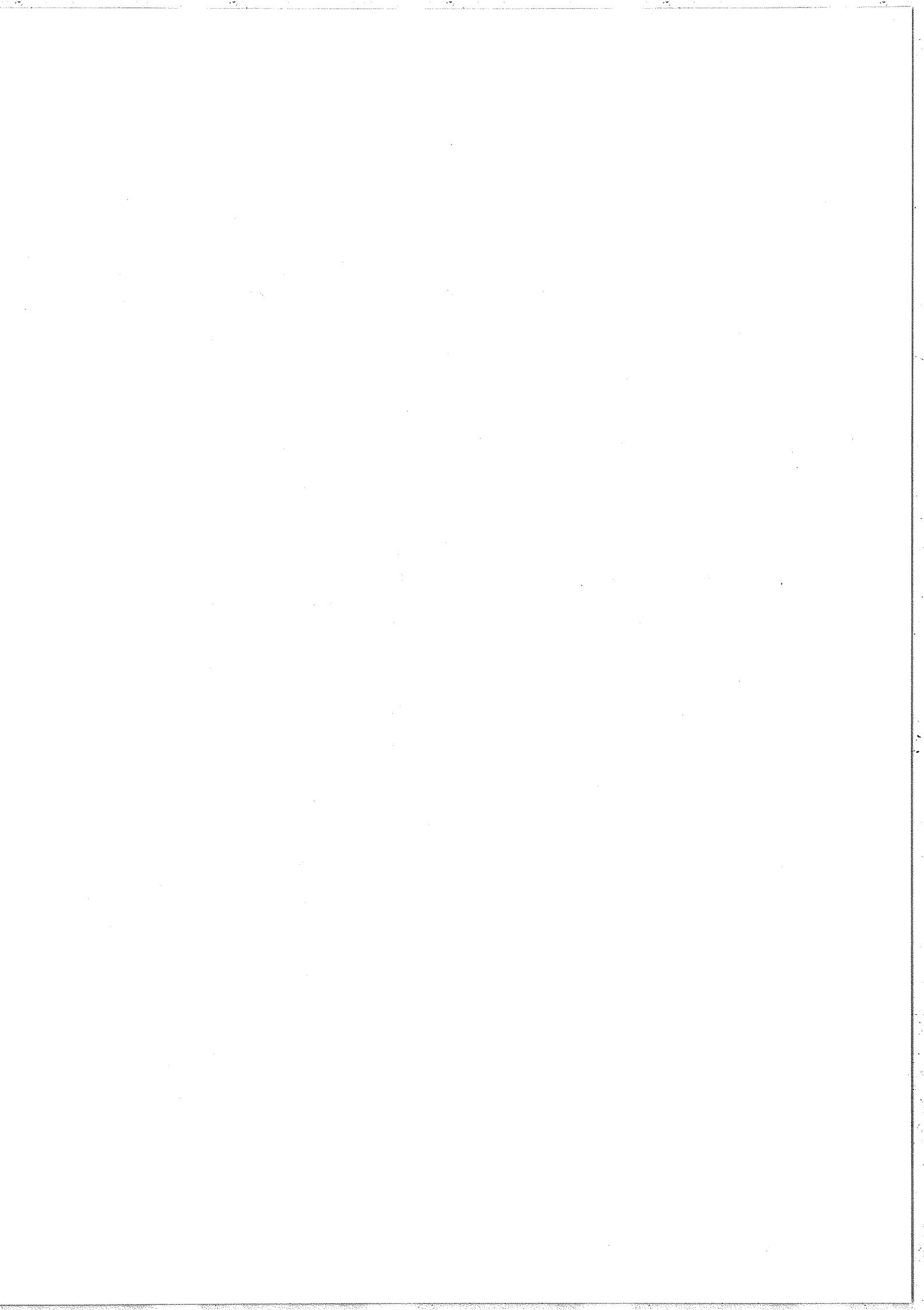


Figure 28 : Caractéristiques du système à trois niveaux et des lasers considérés dans le calcul.



trois niveaux sont supposées indépendantes de la position dans l'espace et du temps. Le système est couplé avec deux champs électriques oscillants  $\underline{E}_1(t)$  et  $\underline{E}_2(t)$  qui sont décrits de manière classique :

$$\underline{E}_1(t) = \frac{1}{2} \left\{ \hat{\underline{e}}_1 \frac{e}{G_1} e^{-i\varepsilon_1 \Omega_1 t} + \text{c.c.} \right\} \text{ faisceau "pompe" (ou saturant)}$$

$$\underline{E}_2(t) = \frac{1}{2} \left\{ \hat{\underline{e}}_2 \frac{e}{G_2} e^{-i\varepsilon_2 \Omega_2 t} + \text{c.c.} \right\} \text{ faisceau sonde}$$

$\hat{\underline{e}}_1$  et  $\hat{\underline{e}}_2$  sont les deux vecteurs unitaires caractérisant la polarisation des lasers. On désigne par  $\delta_1 = \Omega_1 - \omega_{10}$  et  $\delta_2 = \Omega_2 - \omega_{21}$  les écarts à la résonance pour chacun des deux lasers.

En utilisant pour le hamiltonien d'interaction l'approximation dipolaire habituelle et en faisant l'approximation résonnante usuelle (approximation de l'onde tournante), les équations d'évolution des éléments de matrice de l'opérateur densité  $\rho$  de la collection d'atomes s'écrivent :

$$\dot{\rho}_{00} = \gamma_{10} \rho_{11} - \Gamma_0 \rho_{00} + \Lambda_0 + i (I_1 \alpha_{10}^* - I_1^* \alpha_{10}) \quad (10a)$$

$$\begin{aligned} \dot{\rho}_{11} = \gamma_{01} \rho_{00} + \gamma_{21} \rho_{22} - \Gamma_1 \rho_{11} + \Lambda_1 \\ - i (I_1 \alpha_{10}^* - I_1^* \alpha_{10}) + i (I_2 \alpha_{21}^* - I_2^* \alpha_{21}) \end{aligned} \quad (10b)$$

$$\dot{\rho}_{22} = \gamma_{12} \rho_{11} - \Gamma_2 \rho_{22} + \Lambda_2 - i (I_2 \alpha_{21}^* - I_2^* \alpha_{21}) \quad (10c)$$

$$\dot{\alpha}_{10} = r \alpha_{10} - i I_2^* \alpha_{20} + i I_1 (\rho_{11} - \rho_{00}) \quad (10d)$$

$$\dot{\alpha}_{21} = s \alpha_{21} + i I_1^* \alpha_{20} + i I_2 (\rho_{22} - \rho_{11}) \quad (10e)$$

$$\dot{\alpha}_{20} = t \alpha_{20} + i I_1 \alpha_{21} - i I_2 \alpha_{10} \quad (10f)$$

Avec :  $r = i\varepsilon_1 \delta_1 - \Gamma_{10}$  ;  $s = i\varepsilon_2 \delta_2 - \Gamma_{21}$  ;  $t = i (\varepsilon_1 \delta_1 + \varepsilon_2 \delta_2) - \Gamma_{20}$

$$\alpha_{10} = e^{i\varepsilon_1 \Omega_1 t} \rho_{10} ; \quad \alpha_{21} = e^{i\varepsilon_2 \Omega_2 t} \rho_{21}$$

$$\alpha_{20} = e^{i(\varepsilon_1 \Omega_1 + \varepsilon_2 \Omega_2)t} \rho_{20}$$

$$I_1 = \frac{-\mathcal{G}_1}{2\hbar} \langle 1 | \underline{D} \cdot \underline{\hat{e}}_1 | 0 \rangle$$

$$I_2 = \frac{-\mathcal{G}_2}{2\hbar} \langle 2 | \underline{D} \cdot \underline{\hat{e}}_2 | 1 \rangle$$

$\underline{D}$  est l'opérateur dipôle électrique.

Les modules de  $I_1$  et  $I_2$ , soit  $w_1 = (I_1 I_1^*)^{\frac{1}{2}}$  et  $w_2 = (I_2 I_2^*)^{\frac{1}{2}}$ , caractérisent la force des couplages entre le système atomique et les champs appliqués. Les quantités  $2w_1$  et  $2w_2$  sont respectivement les fréquences de nutation de Rabi pour chacune des transitions.

Seules les solutions stationnaires du système d'équations (10) nous intéressent. En désignant par  $n_i$  la densité de population du niveau  $i$  en l'absence des deux lasers ( $I_1 = I_2 = 0$ ) les populations  $\rho_{ii}$  et les cohérences optiques  $\alpha_{ij}$  ( $i \neq j$ ) en présence des deux lasers sont données par le système d'équations suivant :

$$\gamma_{10}(\rho_{11} - n_1) - \Gamma_0(\rho_{00} - n_0) + i(I_1 \alpha_{10}^* - I_1^* \alpha_{10}) = 0 \quad (11a)$$

$$\begin{aligned} \gamma_{01}(\rho_{00} - n_0) + \gamma_{21}(\rho_{22} - n_2) - \Gamma_1(\rho_{11} - n_1) \\ - i(I_1 \alpha_{10}^* - I_1^* \alpha_{10}) + i(I_2 \alpha_{21}^* - I_2^* \alpha_{21}) = 0 \end{aligned} \quad (11b)$$

$$\gamma_{12}(\rho_{11} - n_1) - \Gamma_2(\rho_{22} - n_2) - i(I_2 \alpha_{21}^* - I_2^* \alpha_{21}) = 0 \quad (11c)$$

$$r \alpha_{10} - i I_2^* \alpha_{20} + i I_1(\rho_{11} - \rho_{00}) = 0 \quad (11d)$$

$$s \alpha_{21} + i I_1^* \alpha_{20} + i I_2(\rho_{22} - \rho_{11}) = 0 \quad (11e)$$

$$t \alpha_{20} + i I_1 \alpha_{21} - i I_2 \alpha_{10} = 0 \quad (11f)$$

Dans les expériences que nous allons décrire au §.B.II les résonances sont observées en détectant l'absorption (ou l'amplification) du

laser 2 (faisceau sonde) et plus précisément les modifications de cette absorption provoquées par l'interaction avec le laser 1 (faisceau saturant). La quantité qu'il nous faut calculer est donc le coefficient d'absorption du laser 2 :

$$\alpha_2(\delta_1, \delta_2) = \frac{-1}{P_2} \frac{\partial P_2}{\partial z} = - \frac{2\pi\Omega_2}{P_2} w_2^2 \mathcal{Y}_m\left(\frac{\alpha_{21}}{I_2}\right) \quad (12)$$

$P_2$  est la densité de puissance du laser sonde (puissance par unité de surface) et est proportionnel à  $w_2^2$  ; Oz est l'axe selon lequel se propage le laser.

Le système d'équations linéaires (11) peut être résolu pour des valeurs quelconques des puissances laser, c'est-à-dire de  $w_1$  et  $w_2$  ; la solution générale est très compliquée et conduit, lorsque l'on introduit les effets de vitesse, à des expressions peu maniables et difficiles à interpréter. Nous allons donc chercher à obtenir dans la suite de ce calcul des expressions approchées de  $\mathcal{Y}_m\left(\frac{\alpha_{21}}{I_2}\right)$  valables à la limite des champs faibles ( $w \ll \Gamma_{ij}$ ).

b) Approximation des champs faibles.

Nous allons tout d'abord supposer que la puissance du champ sonde est suffisamment faible pour que l'on puisse se contenter d'une approximation du premier ordre par rapport à  $w_2$  dans le calcul de  $\alpha_{21}$ .

À l'ordre 0 par rapport au champ sonde ( $I_2 = I_2^* = 0$  dans les équations (11)) on obtient :

$$\begin{aligned} \alpha_{20}^{(0)} &= \alpha_{21}^{(0)} = 0 \\ \alpha_{10}^{(0)} &= \frac{-i I_1}{r} (\rho_{11} - \rho_{00})^{(0)} = \frac{-i I_1 Gr^*}{Grr^* - G_B w_1^2 (r+r^*)} (n_1 - n_0) \\ (\rho_{22} - \rho_{11})^{(0)} &= (n_2 - n_1) - \frac{G_A (r+r^*) w_1^2}{Grr^* - G_B w_1^2 (r+r^*)} (n_1 - n_0) \end{aligned} \quad (13)$$

Avec :

$$G = \Gamma_0 \Gamma_1 \Gamma_2 ; G_A = (\Gamma_0 - \gamma_{01})(\Gamma_2 - \gamma_{12}) ; G_B = \Gamma_2 (\Gamma_0 + \Gamma_1 - \gamma_{01} - \gamma_{10}).$$

A l'ordre 1 par rapport au champ sonde vont apparaître les cohérences  $\alpha_{21}$  et  $\alpha_{20}$  données par les équations (11e-f) dans lesquelles on a remplacé  $\alpha_{10}$  et  $(\rho_{22} - \rho_{11})$  par leur valeur à l'ordre 0 (équations (13)).

On obtient :

$$(st + w_1^2) I_2^* \alpha_{21}^{(1)} = -i w_2^2 (\rho_{22} - \rho_{11})^{(0)} t + I_1^* w_2^2 \alpha_{10}^{(0)} .$$

Soit finalement :

$$\begin{aligned} \text{Im} \left( \frac{\alpha_{21}^{(1)}}{I_2} \right) &= (n_1 - n_2) \frac{\text{Re} \left( \frac{t}{st + w_1^2} \right)}{st + w_1^2} \\ &+ (n_1 - n_0) \frac{w_1^2}{G_A r^* - G_B (r+r^*) w_1^2} \text{Re} \left( \frac{-G r^* + G_A (r+r^*) t}{st + w_1^2} \right) . \end{aligned} \quad (14)$$

Cette expression, valable pour une puissance quelconque du laser saturant ( $w_1$  quelconque), sera la base d'une partie importante de la discussion du chapitre C.

Poursuivant notre développement de type perturbatif, nous allons maintenant supposer que la puissance du champ sonde est suffisamment faible pour que l'on puisse se contenter du développement de l'expression précédente à l'ordre 2 par rapport à  $w_1$ . Dans les expériences où l'on cherche à obtenir des résonances étroites pour faire de la spectroscopie sans effet Doppler on est, de fait, amené à travailler avec deux faisceaux laser de faible puissance. La distinction entre faisceau sonde et faisceau saturant ne repose plus alors sur la comparaison de leurs intensités mais bien plutôt sur la particularisation du faisceau dont on observe la transmission. A l'ordre 2 en  $w_1$  l'expression (14) (partie imaginaire de la susceptibilité) devient :



$$\begin{aligned}
\text{Im}\left(\frac{\alpha_{21}}{I_2}\right) &= A = A_0 + A_1 + A_2 + A_3 \\
A_0 &= (n_1 - n_2) \text{Re}\left(\frac{1}{s}\right) \\
A_1 &= (n_1 - n_0) \frac{G_A(r+r^*)}{G} \text{Re}\left(\frac{w_1^2}{rr^*s}\right) \\
A_2 &= (n_0 - n_1) \text{Re}\left(\frac{w_1^2}{rst}\right) \\
A_3 &= (n_2 - n_1) \text{Re}\left(\frac{w_1^2}{s^2t}\right)
\end{aligned} \tag{15}$$

Nous avons obtenu ces expressions en développant l'expression (14), valable quel que soit  $w_1$ , en puissances croissantes de  $w_1$  (puissance 0 et 2 en l'occurrence). Dans un calcul purement perturbatif partant des équations (11) et de leurs solutions en l'absence de laser, on fait agir successivement (avec toutes les possibilités pour ce qui concerne l'ordre) le laser sonde 1 fois et le laser saturant 0 ou 2 fois.

Prenons par exemple le chemin qui aboutit au terme  $A_3$ .

Partant de la différence de population  $(\rho_{22} - \rho_{11})^{(0,0)} = (n_2 - n_1)$  à l'ordre zéro par rapport à  $w_1$  et  $w_2$ , on fait agir une fois le champ  $\vec{E}_2$  et on obtient une cohérence (équation (11e)) :  $\alpha_{21}^{(0,1)} = \frac{-i I_2}{s} (n_2 - n_1)$

qui n'est rien d'autre que le terme qui donne  $A_0$  (absorption sur le faisceau 2 en l'absence du faisceau saturant). En faisant ensuite agir une fois le champ  $\vec{E}_1$  on obtient une cohérence optique entre les niveaux

0 et 2 (équation (11f)) :  $\alpha_{20}^{(1,1)} = \frac{-i I_1}{t} \alpha_{21}^{(0,1)} = \frac{-I_1 I_2}{st} (n_2 - n_1)$ .

Enfin, en faisant agir une nouvelle fois  $\vec{E}_1$  on obtient (équation (11e)) :

$\alpha_{21}^{(2,1)} = \frac{-i I_1^*}{s} \alpha_{20}^{(1,1)} = \frac{i w_1^2 I_2}{s^2 t} (n_2 - n_1)$ . En divisant par  $I_2$  et en

prenant la partie imaginaire on obtient :

$$\text{Im}\left(\frac{\alpha_{21}^{(2,1)}}{I_2}\right) = (n_2 - n_1) \text{Re}\left(\frac{w_1^2}{s^2 t}\right) = A_3$$

On peut faire le même type de calcul pour les autres termes de (15) et justifier ainsi complètement les schéma d'interaction que nous donnons maintenant .

$$\begin{array}{l}
 (n_2 - n_1) \xrightarrow{\vec{E}_2} \alpha_{21} \xrightarrow{\vec{E}_2} \otimes \Delta(n_2 - n_1) \quad A_0 \\
 (n_1 - n_0) \xrightarrow{\vec{E}_1} \alpha_{10} \xrightarrow{\vec{E}_1} \otimes \xrightarrow{\vec{E}_2} \alpha_{21} \xrightarrow{\vec{E}_2} \otimes \Delta(n_2 - n_1) \quad A_1 \\
 (n_1 - n_0) \xrightarrow{\vec{E}_1} \alpha_{10} \xrightarrow{\vec{E}_2} \alpha_{20} \xrightarrow{\vec{E}_1} \alpha_{21} \xrightarrow{\vec{E}_2} \otimes \Delta(n_2 - n_1) \quad A_2 \\
 (n_2 - n_1) \xrightarrow{\vec{E}_2} \alpha_{21} \xrightarrow{\vec{E}_1} \alpha_{20} \xrightarrow{\vec{E}_1} \alpha_{21} \xrightarrow{\vec{E}_2} \otimes \Delta(n_2 - n_1) \quad A_3
 \end{array}$$

Le terme  $A_0$  représente l'absorption linéaire sur le faisceau sonde en l'absence du laser saturant. Le terme  $A_1$  est le terme de saturation habituel (voir le calcul sur les populations) avec modification de la population du niveau intermédiaire (niveau 1). Il correspond à une transition "à deux étages" connectant les niveaux 0 et 2. Le terme  $A_2$  correspond au contraire à un processus "à deux photons" pour lequel il n'apparaît aucune population sur le niveau 1. Par extension du cas particulier du système en V renversé (figure 24c), on peut considérer qu'il s'agit là d'un processus de type transition Raman. Ce terme ne jouera un rôle important que lorsque nous serons à la résonance pour chacune des deux transitions ( $\text{Im}(r) = \text{Im}(s) = 0 \Rightarrow \text{Im}(t) = 0$  ou encore  $\delta_1 = \delta_2 = 0 \Rightarrow \delta_1 + \varepsilon\delta_2 = 0$ ). Dans ce cas là le processus à deux photons (terme  $A_2$ ) sera complètement indiscernable du processus à deux étages (terme  $A_1$ ). Le terme  $A_3$  est lui aussi un processus à deux photons analogue au terme  $A_2$  mais qui subsiste même si le milieu atomique est transparent pour le laser saturant ( $n_0 = n_1$ ), d'où une possibilité d'observer ici le processus à deux photons pur.

Suivant les auteurs, l'interprétation des différents termes apparaissant dans le calcul donne lieu à un vocabulaire et semble-t-il à des explications sensiblement différents (voir par exemple la référence

[75] p. 31). Nous n'interviendrons pas dans cette discussion et nous résumerons un peu la situation en citant la conclusion de Beterov et Chebotaev à ce sujet : "Thus, at the present time there is no agreement about the explanation of the phenomena/ which occur in a three-level gas situated in a strong field, and some features of the predicted phenomena have not so far been given any intuitive physical interpretation" (référence [75], p. 31).

c) Profil des raies de résonance en présence d'effet Doppler.

Notre ensemble d'atomes forme un gaz dans une cellule à la température  $T$ . En l'absence du champ saturant et du champ sonde nous supposons que la population  $n_i$  du niveau  $i$  est, pour une classe de vitesse  $v$  ( $v$  est la projection de la vitesse selon un axe  $Oz$  donné):

$$n_i(v) = \mathcal{N}_i (\sqrt{\pi} v_0)^{-1} e^{-\left(\frac{v}{v_0}\right)^2} ; \quad v_0 = (2RT/M)^{\frac{1}{2}} .$$

Le système atomique est soumis à l'action de deux ondes progressives se propageant selon l'axe  $Oz$ . On désigne par  $k_1$  et  $k_2$  les mesures algébriques des vecteurs d'ondes  $\vec{k}_1$  et  $\vec{k}_2$  correspondant aux deux ondes. Pour une classe de vitesse  $v$  donnée, les équations d'évolution des éléments de matrice de l'opérateur densité  $\rho(v)$  sont obtenues à partir des équations correspondantes pour les atomes au repos (équations (10)) en faisant les substitutions suivantes :

$$\begin{aligned} n_i &\longrightarrow n_i(v) \\ \delta_1 &\longrightarrow (\delta_1 - k_1 v) \\ \delta_2 &\longrightarrow (\delta_2 - k_2 v) . \end{aligned} \tag{16}$$

Cette manière de faire suppose, bien entendu, que les  $\Gamma_i$ ,  $\Gamma_{ij}$  et  $\gamma_{ij}$  soient indépendants de la vitesse longitudinale  $v$  et que l'on ne prenne pas explicitement en considération les collisions qui changent la vitesse [83].

Le coefficient d'absorption total  $\alpha_2$  du laser 2 (faisceau sonde) est la somme des contributions des différentes classes de vitesse :

$$\alpha_2 = \int \alpha_2(\delta_1, \delta_2, v) dv \quad (17)$$

$\alpha_2(\delta_1, \delta_2, v)$  est obtenu, en régime stationnaire, en effectuant les substitutions (16) sur l'expression de  $\alpha_2(\delta_1, \delta_2)$  (équation (12)). Le coefficient d'absorption  $\alpha_2$  peut se réécrire :

$$\alpha_2 = \frac{-2\pi\Omega_2}{P_2} w_2^2 \mathcal{A}_0 \quad \text{avec} \quad \mathcal{A}_0 = \int \text{Im}\left(\frac{\alpha_{21}}{I_2}\right) dv \quad (18)$$

En utilisant pour la partie imaginaire de la susceptibilité l'expression approchée A (équation (15)) et en se plaçant dans la limite des grandes largeurs Doppler ( $\delta\omega_D \gg \Gamma_{ij}$ ) on obtient, après intégration sur les vitesses (intégration sur un contour dans le plan complexe en utilisant la formule des résidus) :

$$\begin{aligned} \mathcal{A}_0 &= \mathcal{A}_0 + \mathcal{A}_1 + \mathcal{A}_2 + \mathcal{A}_3 & \mathcal{A}_i &= \int A_i dv & (19) \\ \mathcal{A}_0 &= (\mathcal{N}_2 - \mathcal{N}_1) \frac{\sqrt{\pi}}{|k_2| v_0} e^{-\left(\frac{\delta_2}{k_2 v_0}\right)^2} \\ \mathcal{A}_1 &= (\mathcal{N}_1 - \mathcal{N}_0) \frac{2\sqrt{\pi}}{|k_1| v_0} w_1^2 \left(1 - \frac{\gamma_{01}}{\Gamma_0}\right) \left(1 - \frac{\gamma_{12}}{\Gamma_2}\right) \frac{\Gamma_B / \Gamma_1}{(\Delta^2 + \Gamma_B^2)} e^{-\left(\frac{\delta_2}{k_2 v_0}\right)^2} \\ \mathcal{A}_2 &= (\mathcal{N}_0 - \mathcal{N}_1) \frac{2\sqrt{\pi}}{|k_1| v_0} w_1^2 \times \min\left(1, \frac{\omega_2}{\omega_1}\right) \frac{(\Delta^2 - \Gamma_B \Gamma_N)}{(\Delta^2 + \Gamma_B^2)(\Delta^2 + \Gamma_N^2)} e^{-\left(\frac{\delta_2}{k_2 v_0}\right)^2} \times \theta(s) \\ \mathcal{A}_3 &= (\mathcal{N}_2 - \mathcal{N}_1) \frac{2\sqrt{\pi}}{|k_1| v_0} w_1^2 \left(1 - \frac{\omega_2}{\omega_1}\right) \frac{(\Delta^2 - \Gamma_N^2)}{(\Delta^2 + \Gamma_N^2)^2} e^{-\left(\frac{\delta_2}{k_2 v_0}\right)^2} \times \theta(s) \times \theta(1-s) \end{aligned}$$

$$\text{Avec : } \Delta = \delta_2 - \frac{k_2}{k_1} \delta_1 \quad ; \quad \Gamma_B = \Gamma_{21} + \left|\frac{k_2}{k_1}\right| \Gamma_{10}$$

$$\Gamma_N = \Gamma_B - \min\left(1, \frac{\omega_2}{\omega_1}\right) [\Gamma_{21} + \Gamma_{10} - \Gamma_{20}]$$

$\theta(x)$  est la fonction échelon :  $\theta(x) = 0$  pour  $x < 0$

$\theta(x) = 1$  pour  $x > 0$

$$s = \frac{-\varepsilon_1 \varepsilon_2 k_2}{k_1} = \frac{-\varepsilon k_2}{k_1} \quad (\varepsilon = +1 \text{ pour un système en cascade ; } \varepsilon = -1 \text{ pour un système en V ou en V inversé}).$$

Si l'on fait  $\gamma_{01} = \gamma_{12} = 0$  les expressions (19) sont identiques à celles obtenues par Hänsch et Toschek (référence [74], p. 234).

Selon la valeur du paramètre  $S$  les termes  $\mathcal{A}_2$  et  $\mathcal{A}_3$  pourront ou ne pourront pas exister ; les cas où ces termes peuvent apparaître sont indiqués dans le tableau 5.

		$\mathcal{A}_2$		$\mathcal{A}_3$	
		$k_2/k_1 > 0$ ⇒ ⇒	$k_2/k_1 < 0$ ⇒ ⇐	$k_2/k_1 > 0$ ⇒ ⇒	$k_2/k_1 < 0$ ⇒ ⇐
cascade $\varepsilon = +1$ I	$\omega_2 > \omega_1$		X		
	$\omega_2 < \omega_1$		X		X
V ou V renversé $\varepsilon = -1$ II V	$\omega_2 > \omega_1$	X			
	$\omega_2 < \omega_1$	X		X	

Tableau 5

Le terme  $\mathcal{A}_0$  correspond à l'absorption du faisceau sonde en l'absence du laser saturant ; lorsqu'on fait varier la fréquence du laser 2 le profil est, dans la limite des approximations utilisées, une gaussienne de largeur à mi-hauteur  $k_2 v_0 \sqrt{\log 2}$ . Dans les expériences on élimine cette contribution par une technique appropriée de manière à n'observer que les signaux dus à l'action du laser saturant.

Le terme  $\mathcal{A}_1$  (figure 29a) est une lorentzienne de demi-largeur  $\Gamma_B$  et s'identifie (dans la limite  $x \ll 1$ ) au terme obtenu dans le calcul de saturation des populations (formule (7)). Ce terme de

saturation correspond à une absorption "à deux étages" des lasers 1 et 2 qui connecte le niveau 0 au niveau 2.

Le terme  $\mathcal{A}_2$  (figure 29b) correspond, au contraire, à un processus à deux photons du type transition Raman pour lequel il n'apparaît pas d'effet sur la population du niveau 1. Ce terme n'apparaît que pour  $S > 0$  et est par conséquent responsable d'une anisotropie des résonances données par les systèmes à trois niveaux. On retrouve bien, au bout de notre calcul avec la matrice densité, l'effet discuté précédemment de manière qualitative.

Pour  $\gamma_{01} = \gamma_{12} = 0$  (ceci est vérifié dans le cas  $E_2 > E_1 > E_0$  ou bien quand on néglige l'émission spontanée) et si on peut écrire :

$\Gamma_{ij} = (\Gamma_i + \Gamma_j)/2$ , on obtient pour la somme des deux termes  $\mathcal{A}_1$  et  $\mathcal{A}_2$  l'expression suivante (dans le cas où  $S > 0$ ) :

$$(\mathcal{A}_1 + \mathcal{A}_2) = (\mathcal{N}_1 - \mathcal{N}_0) \frac{2\sqrt{\pi}}{|k_1| v_0} w_1^2 e^{-\left(\frac{\delta_2}{k_2 v_0}\right)^2} \frac{\Gamma_N/\Gamma_1}{\Delta^2 + \Gamma_N^2} \quad (20)$$

L'expression correspondante pour  $S < 0$  est :

$$(\mathcal{A}_1 + \mathcal{A}_2) = (\mathcal{N}_1 - \mathcal{N}_0) \frac{2\sqrt{\pi}}{|k_1| v_0} w_1^2 e^{-\left(\frac{\delta_2}{k_2 v_0}\right)^2} \frac{\Gamma_B/\Gamma_1}{\Delta^2 + \Gamma_B^2} \quad (21)$$

On a dans ce cas :

$$2\Gamma_B = \frac{\omega_2}{\omega_1} \Gamma_0 + \Gamma_2 + \left(1 + \frac{\omega_2}{\omega_1}\right) \Gamma_1 \quad \text{et} \quad 2\Gamma_N = \frac{\omega_2}{\omega_1} \Gamma_0 + \Gamma_2 + \left|1 - \frac{\omega_2}{\omega_1}\right| \Gamma_1 \quad .$$

Pour un système à trois niveaux donné on aura donc dans ce cas une résonance lorentzienne de demi-largeur  $\Gamma_B$  ou  $\Gamma_N$  ( $\Gamma_N < \Gamma_B$ ) selon le sens relatif de propagation des deux lasers. On peut remarquer que, dans la limite des grandes largeurs Doppler ( $\Gamma_B, \Gamma_N \ll \delta\omega_D$ ) l'aire sous chacune des deux courbes est la même et donc que la résonance la plus étroite est aussi la plus intense (figures 29a et 29c).

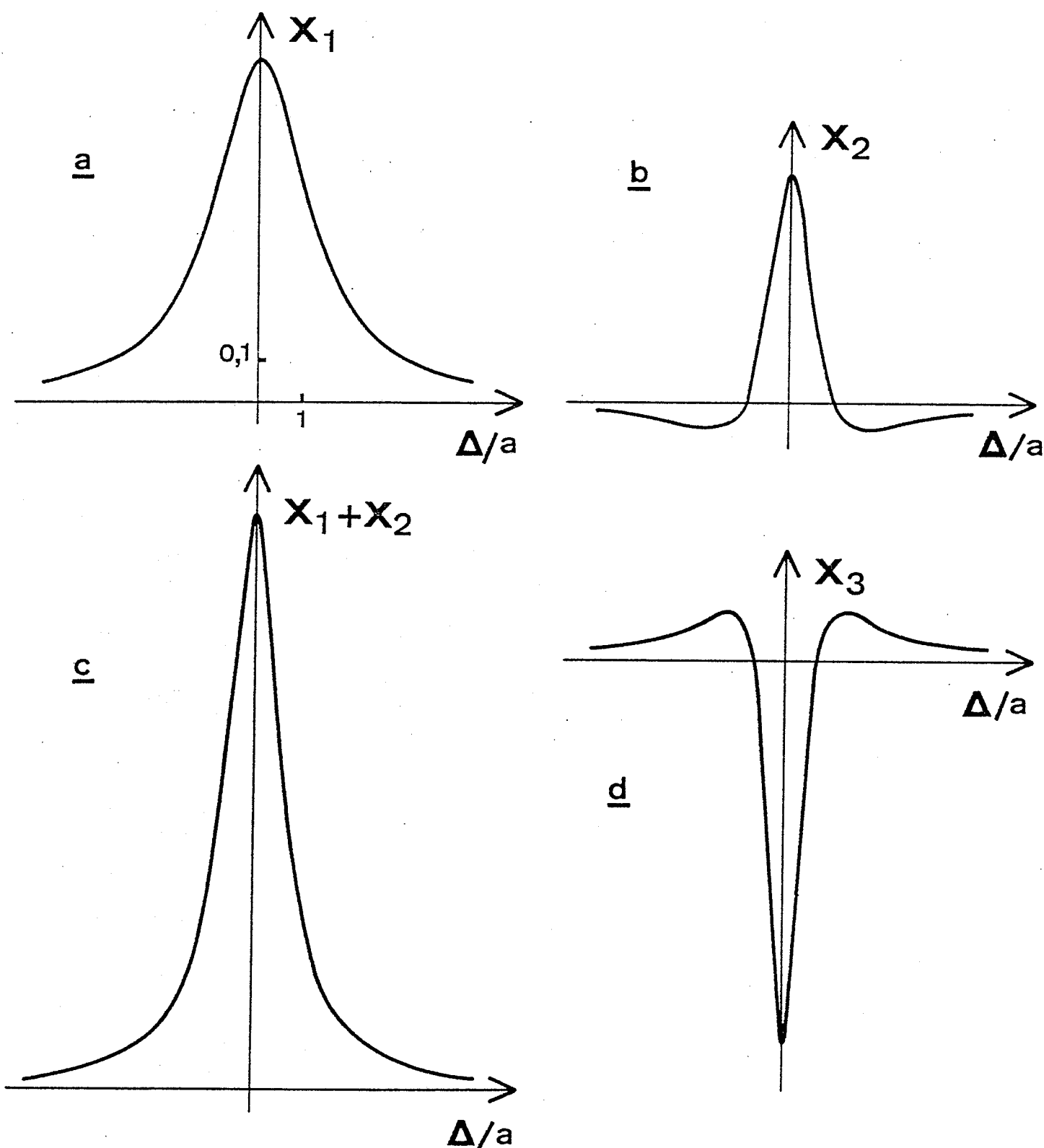
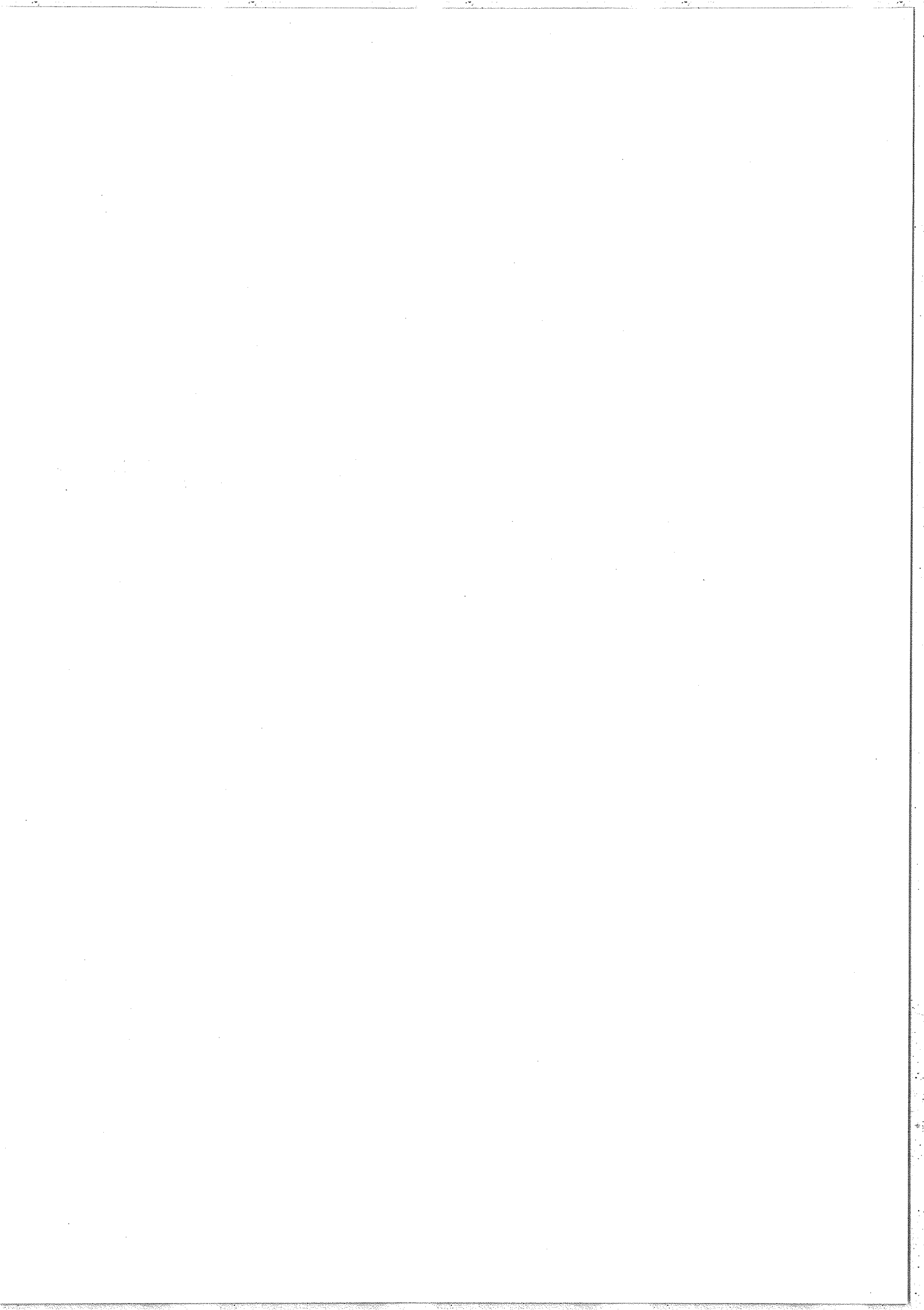


Figure 29 : Forme des résonances données par les systèmes à trois niveaux

$$(\gamma_{01} = \gamma_{12} = \Gamma_0 = 0, \Gamma_1 = \Gamma_2 = a; \Gamma_{ij} = (\Gamma_i + \Gamma_j)/2, S = \frac{\omega_2}{\omega_1} = 0,5, \quad -(\frac{\delta_2}{k_2 v_0})^2$$

$\Rightarrow \Gamma_B = \frac{5a}{4}$  et  $\Gamma_N = \frac{3a}{4}$  ;  $X_i = a^2 \mathcal{H}_i / (\Delta \mathcal{N} \frac{2\sqrt{\pi}}{|k_1| v_0} w_1^2 e^{-\frac{\delta_2}{k_2 v_0}})$  ; les échelles horizontales et verticales sont les mêmes pour toutes les courbes).





Sauf dans le cas où  $N_2 = N_1$  (ce qui entraîne également  $A_0 = 0$ ) le terme  $A_3$  vient se superposer aux deux précédents pour les systèmes à trois niveaux tels que  $0 < S < 1$ . Le terme  $A_3$  (figure 29d) est tout à fait analogue au terme  $A_2$  et correspond également à un processus à deux photons sans création de population dans le niveau 1. On peut remarquer que ce terme subsiste seul dans le cas où le milieu est transparent pour le faisceau saturant ( $N_1 = N_0$ ). On peut, dans une telle situation, observer le processus à deux photons pur (terme  $A_3$ ) [66] et non plus la superposition des processus à deux photons et à deux étages (terme  $A_1 + A_2$ ) qui sont indiscernables dans le domaine où la condition de résonance est satisfaite pour les deux transitions.

Les différentes courbes de résonance que le modèle théorique que nous avons utilisé permet de prévoir sont représentées sur la figure 29.

#### d) Discussion du calcul.

Le calcul qui précède comporte un certain nombre d'approximations sur lesquelles nous voudrions revenir maintenant. Tout d'abord, il s'agit d'un calcul en perturbation valable seulement pour des puissances lasers pas trop fortes. Le système d'équations linéaires (11) est facilement soluble pour des valeurs quelconques des puissances des deux lasers mais les expressions obtenues ne sont pas très maniables et l'intégration sur les vitesses est difficile à réaliser analytiquement. On peut toujours, comme nous le ferons au Chapitre C, calculer numériquement sur ordinateur la forme des courbes de résonance pour un jeu de paramètres donnés et tenir compte ainsi des effets de puissance (effet Autler-Townes, light-shifts, élargissements radiatifs, ...). Au Chapitre C nous discuterons longuement le cas de l'effet Autler-Townes en partant de l'expression obtenue au premier ordre par rapport au champ sonde (équation (14)) et en utilisant une méthode graphique pour tenir compte de l'effet Doppler.

Nous avons également supposé que les niveaux 0, 1 et 2 ne sont pas dégénérés et nous n'avons pas tenu réellement compte de la polarisation des lasers. Eu égard aux études expérimentales dont nous ferons état aux Chapitres C et D, il s'agit là d'une importante restriction au domaine d'application de notre calcul. Il n'y a aucune difficulté de principe à tenir compte dans la limite des faibles puissances laser de la dégénérescence Zeeman et des polarisations des lasers [74, 84-87]. Il faut toutefois considérer le couplage entre sous-niveaux Zeeman par émission spontanée (effets de pompage optique) ainsi que l'existence de constantes de relaxation différentes pour les populations, l'orientation et l'alignement [88] ; cela complique beaucoup le problème dès que les moments cinétiques  $J$  des niveaux sont supérieurs à 1 .

Pour ce qui concerne les collisions, notre calcul ne les prend en compte que par leur contribution aux constantes de relaxation  $\Gamma_i$  et  $\Gamma_{ij}$  et néglige l'effet des collisions qui changent la vitesse dont l'influence sur les formes de raies en spectroscopie de saturation peut être très importante [83, 89, 90]. Nous n'avons pas non plus tenu compte de certains phénomènes tels que les transferts de métastabilité, les transferts entre sous-niveaux Zeeman, l'emprisonnement de radiation.. qui peuvent aussi modifier très fortement les profils expérimentaux [76]. L'introduction de tels effets dans les équations d'évolution du système à trois niveaux ne se justifierait que si nous avions réalisé l'étude expérimentale correspondante de façon systématique, ce qui n'est pas le cas.

Dans notre calcul nous n'avons pas non plus introduit l'équation de propagation des champs électriques  $\vec{E}_1(z,t)$  et  $\vec{E}_2(z,t)$ . Le coefficient d'absorption  $\alpha_2$  est en fait calculé en une position  $z$  déterminée, c'est-à-dire en un point où les amplitudes des champs électriques sont  $\mathcal{E}_1(z)$  et  $\mathcal{E}_2(z)$  respectivement. Si le milieu est suffisamment mince optiquement pour que l'on puisse négliger les variations de  $\mathcal{E}_1$  et  $\mathcal{E}_2$  entre 0 et  $L$  ( $L$  étant la longueur de la cellule),  $\alpha_2$  sera pratiquement indépendant de  $z$  et on aura donc :

$$\frac{1}{\mathcal{E}_2} \frac{\partial \mathcal{E}_2}{\partial z} = -\frac{\alpha_2}{2} \quad \mathcal{E}_2 = \mathcal{E}_2^0 e^{-\frac{\alpha_2 z}{2}} \approx \mathcal{E}_2^0 \left(1 - \frac{\alpha_2 z}{2}\right) . \quad (22)$$

Dans le cas contraire on devra tenir compte plus exactement de la propagation de  $\mathcal{E}_1$  et  $\mathcal{E}_2$  selon le schéma suivant : les champs  $\mathcal{E}_1(z)$  et  $\mathcal{E}_2(z)$  induisent des polarisations macroscopiques  $\mathcal{P}_1(z)$  et  $\mathcal{P}_2(z)$  dans le milieu atomique ( $\mathcal{P}_i = \text{Trace}(\rho D_i)$ ) ; ces polarisations constituent des termes sources dans les équations de propagation des champs  $\mathcal{E}_1$  et  $\mathcal{E}_2$  (équations de Maxwell) et modifient donc les valeurs de ces champs en  $(z+dz) = z'$  ; les champs  $\mathcal{E}_1(z')$  et  $\mathcal{E}_2(z')$  induisent à leur tour des polarisations ... Les équations couplées (équations de la matrice densité + équations de Maxwell) s'écrivent assez simplement si l'on peut considérer que  $\mathcal{E}_i(z, t)$  est une fonction lentement variable (à l'échelle de la longueur d'onde et de la période de l'onde laser) de l'espace et du temps (voir par exemple [91]). On obtient pour la propagation du champ électrique  $\mathcal{E}_i$  :

$$\frac{\partial \mathcal{E}_i}{\partial z} = \frac{-ik_i}{2 \epsilon_0} \mathcal{P}_i \quad (23)$$

$\mathcal{P}_i$ , polarisation macroscopique moyennée sur les différentes classes de vitesse, étant une fonction de  $\mathcal{E}_1$  et  $\mathcal{E}_2$ , on ne peut pas en général donner une solution analytique pour l'équation de propagation de  $\mathcal{E}_i$ . On peut néanmoins obtenir une résolution numérique du système d'équations (10) et (23). Dans la plupart de nos expériences l'absorption sera faible et on pourra utiliser l'approximation (22). Dans nos toutes premières expériences sur les systèmes à trois niveaux des effets sur les intensités des résonances, liés à une trop forte absorption du faisceau saturant, ont néanmoins été observés.

## II. Etude expérimentale.

Notre étude des systèmes à trois niveaux en interaction avec deux lasers monochromatiques quasi-résonnants a été réalisée sur l'atome de néon. Une longue tradition existe en effet au Laboratoire Aimé Cotton pour l'étude spectroscopique des gaz rares (structures hyperfines et déplacements isotopiques) en particulier en utilisant les raies laser infrarouges [14-17]. Pour le néon, l'effet laser dans le proche infrarouge est assez facile à obtenir sur un grand nombre de raies et de nombreuses transitions visibles ( $2p \rightarrow 1s$ ,  $5s \rightarrow 2p$ ,  $4d \rightarrow 2p$ ) sont situées dans un domaine spectral facilement accessible aux lasers à colorant continu (lasers à rhodamine 6G). Le début de notre étude a d'ailleurs correspondu aux premières utilisations pour un élément autre que le sodium du laser à colorant monofréquence mis au point par S. Liberman et J. Pinard [21]. Enfin, certains résultats spectroscopiques surprenants obtenus au M.I.T. sur le  $^{21}\text{Ne}$  [41, 42, 47] par une technique d'affinement des raies de fluorescence (F.L.N.) nous ont poussé à reprendre une étude des mêmes systèmes à trois niveaux en évitant l'analyse spectrale de l'émission spontanée par l'utilisation d'un laser accordable. Nous avons donc travaillé dans un premier temps avec un laser He-Ne infrarouge ( $\lambda = 11522 \text{ \AA}$ ) et un laser à colorant ( $\lambda = 6096 \text{ \AA}$  ou  $\lambda = 5945 \text{ \AA}$ ) ; les transitions et les niveaux concernés sont indiqués sur la figure 30. Dans le but d'augmenter le nombre de niveaux accessibles et en profitant des possibilités offertes par l'apparition des lasers à colorant commerciaux monofréquence, nous avons ensuite poursuivi notre étude à l'aide de deux lasers à colorant.

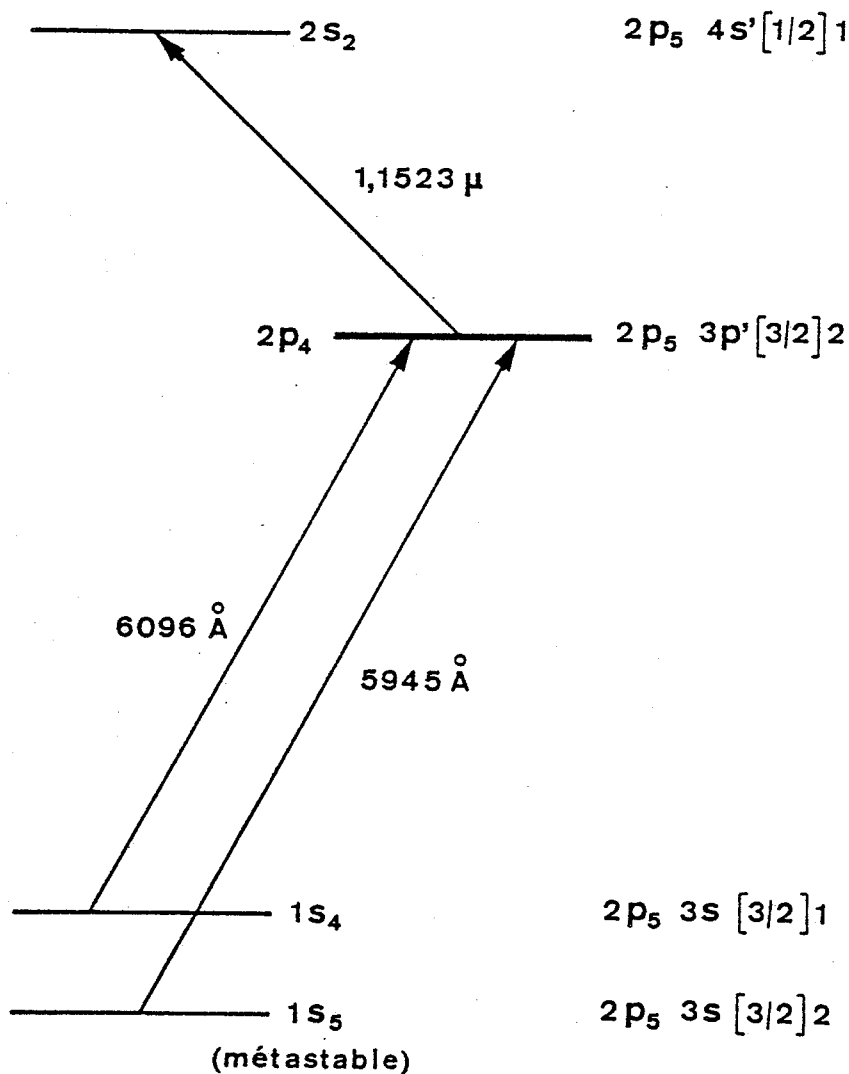


Figure 30 : Systèmes étudiés dans le néon à l'aide d'un laser He-Ne et d'un laser à colorant.

1° - Expériences utilisant un laser He-Ne et un laser à colorant.

a) Le laser He-Ne .

Parmi les nombreuses techniques permettant d'obtenir le fonctionnement monomode d'un laser à gaz [92] nous avons choisi celle utilisant un absorbant saturable placé à l'intérieur de la cavité [47, 93-96] . Le laser comporte donc un milieu amplificateur et un milieu absorbant saturable à l'intérieur de la cavité résonnante (figure 31). Cette cavité est constituée par deux miroirs de 1,5 m de rayon de courbure

situés à une distance de 1,3 m environ (écart entre modes longitudinaux successifs d'environ 115 MHz). Le tube amplificateur (diamètre intérieur 2 mm, longueur 80 cm) est rempli d'un mélange d'hélium et de néon (pression totale entre 2 et 3 torr, environ 10% de néon) et est excité par une décharge continue ( $i \approx 7$  mA). Le tube absorbant (diamètre intérieur 4 mm, longueur 40 cm) est rempli de néon pur (pression  $p \approx 0,6$  torr) et est excité lui aussi par une décharge continue ( $i \approx 25$  mA). Dans le cas où on ne cherche pas à balayer la fréquence du laser He-Ne on peut se contenter de néon naturel dans les deux tubes ; dans le cas contraire (Chapitre C) et si l'on veut bénéficier d'une plage de balayage pas trop étroite ( $\Delta\nu \approx 300$  MHz) il faut utiliser un isotope pur ( $^{20}\text{Ne}$ ) dans le tube amplificateur et un mélange ( $^{20}\text{Ne}$  et  $^{22}\text{Ne}$ ) dans le tube absorbant, le dosage du mélange étant d'ailleurs assez délicat à réaliser.

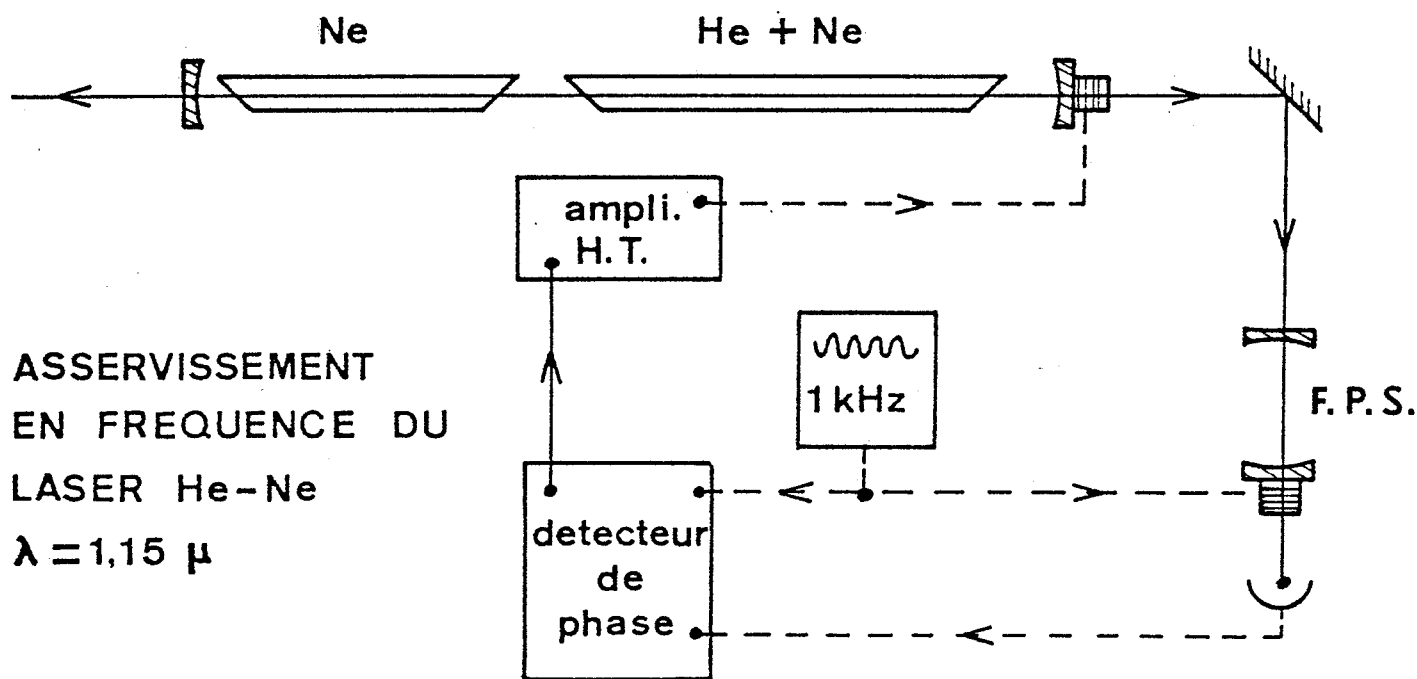


Figure 31 :

Schéma du laser He-Ne et de son asservissement en fréquence.

L'utilisation de miroirs à revêtements multidiélectriques convenables permet d'obtenir le fonctionnement sur la raie  $\lambda = 11522 \text{ \AA}$  ( $2s_2 \rightarrow 2p_4$ ) seule (nous avons en fait observé le fonctionnement simultané à  $1,15 \mu$  et à  $1,16 \mu$  ( $2s_3 \rightarrow 2p_5$ ) lorsque le tube amplificateur seul est allumé ; la deuxième raie laser, beaucoup moins intense, disparaissant dès qu'on allume le tube absorbant). Lorsque le tube absorbant n'est pas excité, on obtient 7 à 8 modes longitudinaux ; en ajustant convenablement la pression et le courant dans ce tube, on obtient le fonctionnement monomode (figure 32). Les enregistrements de la figure 32 ont été obtenus en analysant spectralement la lumière laser à l'aide d'un F. P. sphérique de 10 cm de long (intervalle spectral libre 25 mK) à balayage piézoélectrique.

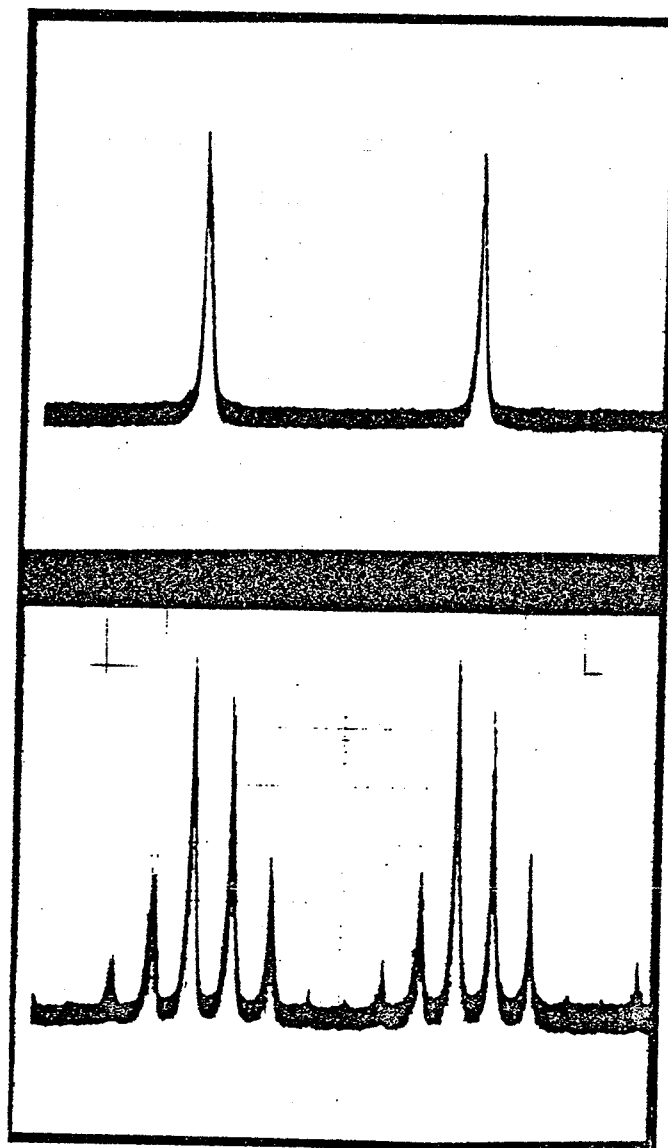


Figure 32 :

Passage du fonctionnement multimode au fonctionnement monomode en utilisant un tube absorbant dans la cavité (intervalle spectral libre de l'analyseur de mode : 750 MHz)

Dans le cadre de la théorie de Lamb des lasers [97] on peut expliquer l'effet de sélection de mode obtenu à l'aide de la cuve absorbante remplie de néon pur : si la pression et le courant dans ce tube sont convenablement ajustés, on passe, du fait de la présence de cet absorbant saturable, du régime multimode habituel où les différents modes sont pratiquement indépendants, à un régime de très fort couplage entre les modes dans lequel seul le fonctionnement monomode est stable [95,97].

Les miroirs du laser sont portés par deux flasques dont la distance est maintenue constante par trois barres d'invar ; on limite ainsi les dérives de fréquence du laser liées aux dilatations thermiques. De plus, la fréquence du laser est maintenue centrée sur le pic de transmission d'un F. P. sphérique de référence de 10 cm de long par un asservissement (figure 31) identique à celui décrit dans la référence [21], ce qui permet selon le cas de maintenir la fréquence du laser fixe ou de piloter son balayage en modifiant la longueur du F. P. . Une dérive de 0,1°C au cours d'un enregistrement (quelques minutes dans le cas des structures hyperfines) correspond à une dérive de fréquence de l'ordre de 15 MHz (pour un coefficient de dilatation de  $6 \cdot 10^{-7}$  de l'invar constituant la monture du F. P. de référence) ; l'erreur systématique qui en résulterait sur les écarts entre résonances peut être rendue négligeable devant les autres causes d'erreur (étalonnage et linéarité du balayage du deuxième laser) en prenant la moyenne d'enregistrements obtenus en balayant successivement le deuxième laser vers les nombres d'ondes croissants puis vers les nombres d'ondes décroissants, ce qui supprime l'effet des dérives linéaires dans le temps.

#### b) Le laser à colorant.

Dans les expériences que nous allons maintenant décrire, nous avons utilisé le laser à colorant construit au laboratoire [21], ce laser étant asservi et piloté en fréquence par un sigmamètre [37, 38]. Les fluctuations d'intensité du laser à colorant étant beaucoup plus importantes que celles du laser à gaz, nous avons préféré détecter les



résonances sur le laser infrarouge (faisceau "sonde"), tout en tirant partie de la grande plage de balayage offerte (10 GHz) par le laser à colorant (faisceau "saturant").

c) Montage et résultats expérimentaux.

Le montage expérimental utilisé est représenté sur la figure 33. Dans un premier temps nous avons utilisé des lames de verre recouvertes d'un dépôt de silicium pour mélanger et séparer les deux faisceaux de part et d'autre de la cuve d'interaction. Nous avons, par la suite, utilisé deux prismes équilatéraux pour jouer ce rôle, de manière à bénéficier aussi complètement que possible des puissances laser disponibles. Les détecteurs utilisés sont des diodes au silicium avec ou sans effet d'avalanche, selon le cas. Une partie du faisceau sonde est prélevée avant la cuve par une lame séparatrice et est envoyée sur une photodiode de référence. Le faisceau ayant traversé la cuve d'interaction est envoyé sur une deuxième photodiode. En utilisant un amplificateur

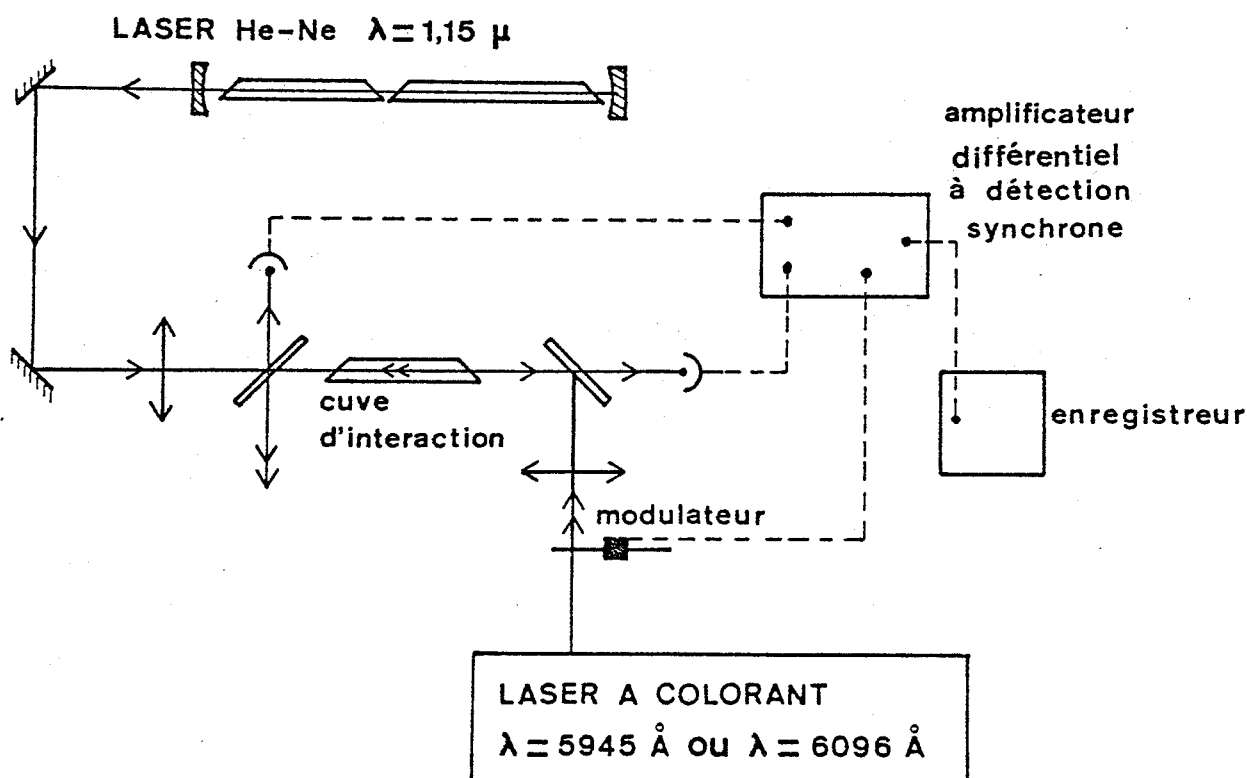


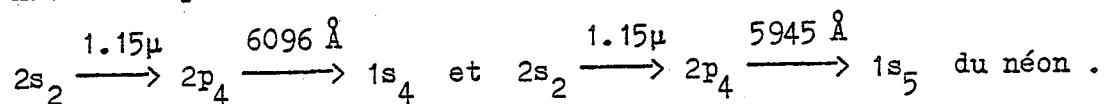
Figure 33 : Montage expérimental pour l'observation des résonances à l'aide d'un laser He-Ne et d'un laser à colorant.

différentiel, on soustrait les signaux donnés par les deux détecteurs (après avoir équilibré la voie signal et la voie référence) et on compense ainsi efficacement les fluctuations d'intensité du laser sonde. Les deux photodiodes sont précédées par des filtres interférentiels centrés à  $1,15 \mu$  qui permettent d'éliminer la lumière parasite pouvant provenir des différents tubes à décharge (tubes du laser et cuve d'expérience). Les deux faisceaux, de polarisations rectilignes identiques, sont colinéaires dans la cuve d'interaction où ils se propagent, soit dans le même sens, soit en sens opposés. Dans ces expériences, notre cuve d'expérience est un tube de diamètre intérieur 3 mm, fermé par des fenêtres à incidence brewstérienne, rempli de néon naturel (pression  $p \approx 0.2 - 0.3$  torr) et excité par une décharge continue (intensité du courant  $i \approx 5 - 10$  mA) ; la longueur utile de la décharge est environ de 15 cm. Dans ces conditions, on obtient un milieu très faiblement amplificateur pour le laser infrarouge ( $n_2 > n_1$ ) et très absorbant pour le laser visible ( $n_0 > n_1$  et  $(n_2 - n_1) \ll (n_0 - n_1)$ ).

En modulant le courant de décharge dans la cuve et en utilisant un amplificateur à détection synchrone, on peut observer le signal correspondant à l'amplification du laser sonde en fonction de la fréquence du laser saturant. A la résonance nous avons obtenu, comme la discussion du §.B.I.1° le prévoit dans ce cas, une résonance de largeur beaucoup plus faible que la largeur Doppler et correspondant à une diminution de l'amplification. Nous avons ainsi obtenu une vérification directe du signe de la résonance donnée par le système à trois niveaux en interaction avec deux lasers.

Nous avons utilisé par la suite un autre type de modulation de manière à observer le signal de résonance sur un fond nul. Pour ceci, on module mécaniquement le faisceau saturant à une fréquence de 200 Hz et on utilise un amplificateur à détection synchrone. De cette manière on n'observe que les modifications de la transmission du laser sonde à travers la cuve induites par le faisceau saturant. C'est ainsi que nous avons procédé (figure 33) pour étudier les deux systèmes à trois

niveaux représentés sur la figure 30, à savoir les cascades



Les signaux obtenus avec du néon naturel en faisant varier la fréquence du laser saturant (laser à colorant) sont montrés sur la figure 34. Les largeurs de raies obtenues dans ce cas là sont de  $(80 \pm 5)$  MHz et de  $(110 \pm 5)$  MHz respectivement pour des faisceaux se propageant en sens opposés et pour des faisceaux se propageant dans le même sens. Cette anisotropie des signaux de résonance ainsi que la forme de ceux-

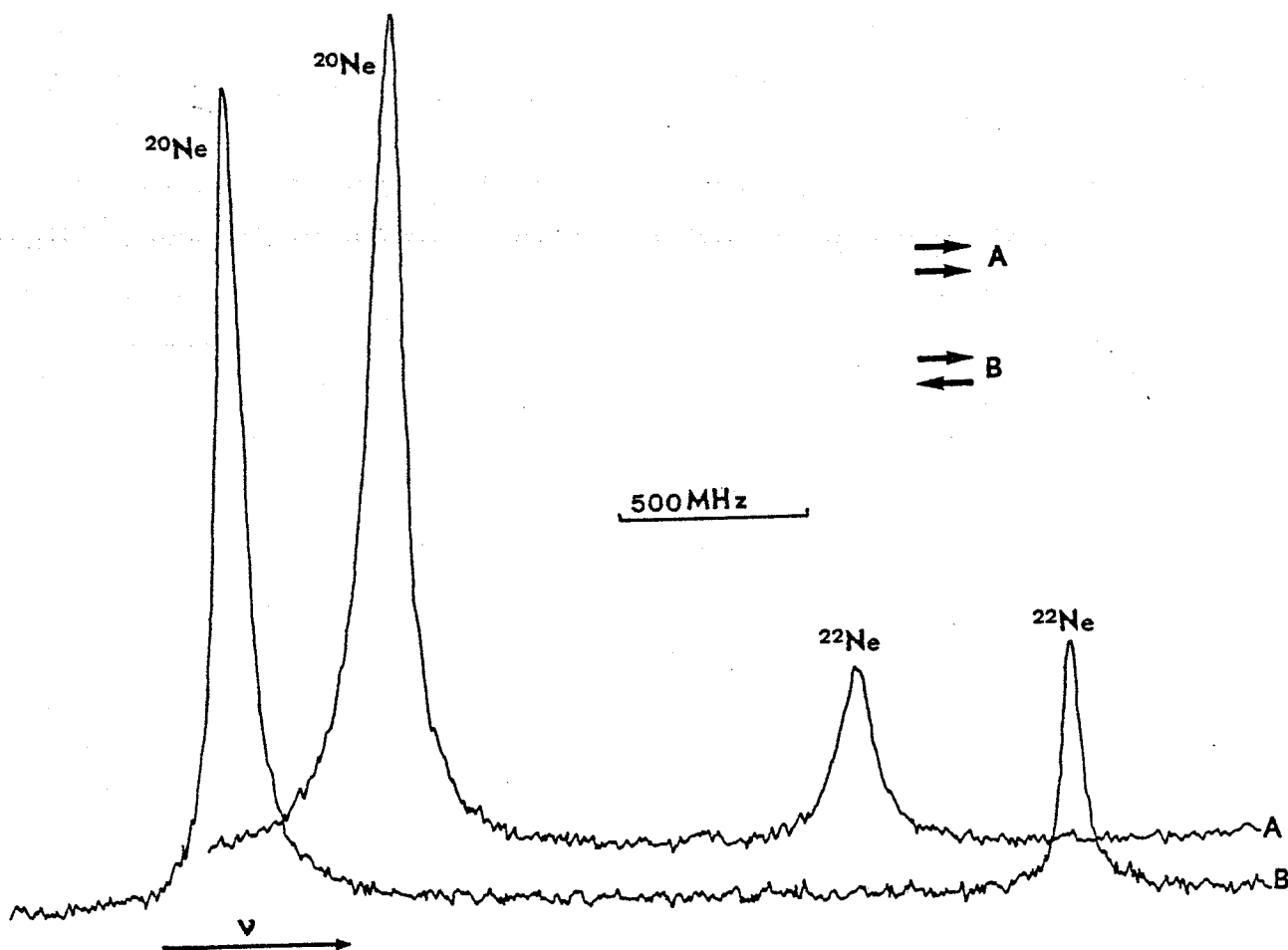


Figure 34 : Courbes expérimentales obtenues pour la cascade  $2s_2 \rightarrow 2p_4 \rightarrow 1s_4$  avec du néon naturel.

Les amplitudes relatives des courbes A (faisceau parallèles) et B (faisceaux anti-parallèles) ne sont pas significatives.

ci sont conformes aux prévisions théoriques du §.B.I.2° (compte tenu de  $|S| = 0.516$  et  $(n_2 - n_1) \ll (n_0 - n_1)$ ). La largeur Doppler pour la raie d'absorption visible étant de 1,5 GHz environ, on obtient par notre procédé un affinement très important de la raie, d'où le sigle A.L.N. (Absorption Line Narrowing) utilisé dans nos publications [49,68] et également au Laboratoire Aimé Cotton pour désigner ces expériences.

On peut calculer, à partir des durées de vie des niveaux [98, 99], les largeurs attendues pour ces courbes à pression nulle. On obtient pour la cascade  $2s_2 \rightarrow 2p_4 \rightarrow 1s_5$  les valeurs de  $\Gamma_N$  et  $\Gamma_B$  suivantes:  $2\Gamma_N = 153$  MHz et  $2\Gamma_B = 215$  MHz ; les largeurs correspondantes pour les courbes obtenues en faisant varier  $\delta_1$  devraient être :

$$\Delta\nu_1^N = \frac{\Delta\delta_1^N}{2\pi} = \frac{\omega_1}{\omega_2} \times \frac{2\Gamma_N}{2\pi} = 47 \text{ MHz} \quad \text{et} \quad \Delta\nu_1^B = \frac{\Delta\delta_1^B}{2\pi} = \frac{\omega_1}{\omega_2} \times \frac{2\Gamma_B}{2\pi} = 66 \text{ MHz} .$$

Pour la résonance la plus étroite nous avons obtenu expérimentalement, dans le meilleur des cas ( $p < 0,1$  torr) une largeur voisine de 60 MHz. Aux faibles densités d'énergie utilisées (quelques centaines de  $\mu\text{W}/\text{mm}^2$ ) nous n'avons pas observé, sur la largeur des courbes expérimentales,

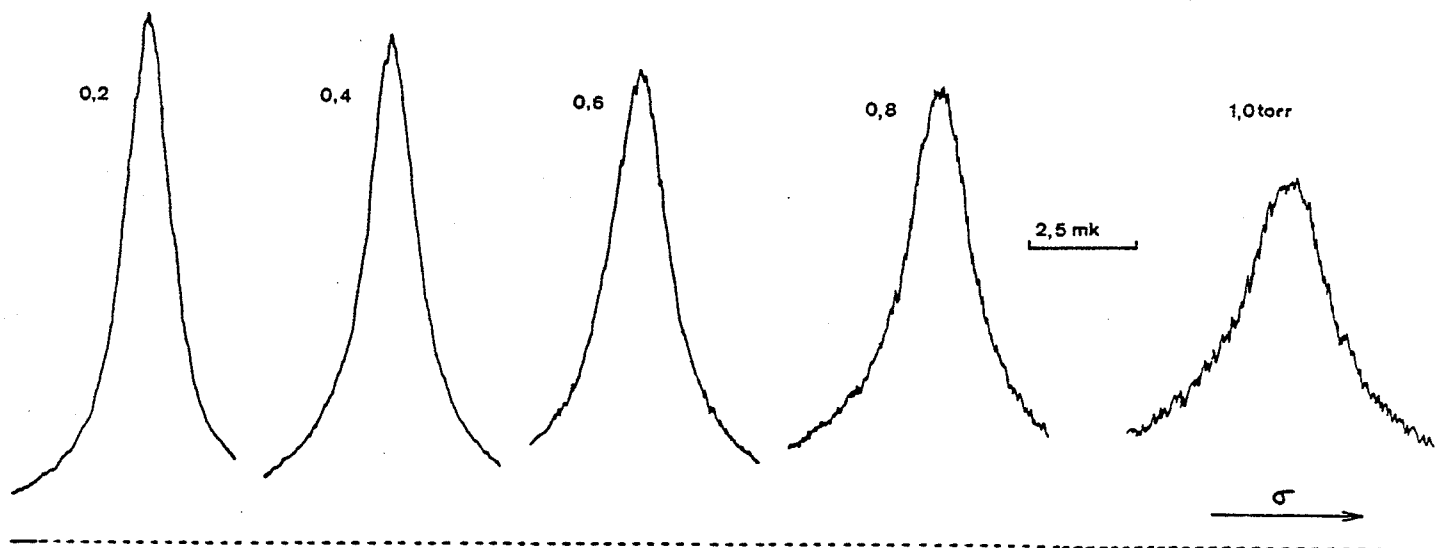


Figure 35 : Evolution de la courbe de résonance avec la pression du néon.

d'effets de saturation significatifs. Pour expliquer la trop grande largeur obtenue pour les courbes expérimentales, on peut invoquer, outre les effets de pression et de saturation, l'élargissement due au jitter des lasers (10 MHz au minimum pour le laser à colorant) et au fait que les faisceaux peuvent ne pas être strictement colinéaires.

Nous n'avons pas entrepris d'étude détaillée de la forme et de la largeur des raies en fonction de la pression. On trouvera néanmoins sur la figure 35 un ensemble de courbes expérimentales montrant l'évolution avec la pression des signaux obtenus dans une expérience sur le système  $2s_2 \rightarrow 2p_4 \rightarrow 1s_5$  avec des faisceaux se propageant en sens opposés. Ces courbes ont été enregistrées en maintenant fixe la fréquence du laser saturant et en faisant varier la fréquence du laser sonde (laser He-Ne) ce qui conduit, par rapport aux courbes de la figure 34 à un simple facteur d'échelle égal au rapport des fréquences  $\frac{\omega_1}{\omega_2} \approx 1.94$ . La plage de balayage du laser infrarouge utilisé est trop étroite pour que l'on puisse envisager de faire de la spectroscopie de position de cette manière.

d) Mesures de déplacements isotopiques et de structures hyperfines.

La condition de résonance pour le système à trois niveaux s'écrit (voir §.B.I.1° et 2°) :  $\delta_2 = (k_2/k_1)\delta_1$  ou encore, en tenant compte de ce que les deux lasers sont quasi-résonnants :  $\delta_2 = \eta \frac{\omega_2}{\omega_1} \delta_1$ .

Dans le cas où le laser sonde a une fréquence fixe  $\Omega_2$ , la fréquence  $\Omega_1^R$  du laser sonde correspondant à la résonance est :

$$\Omega_1^R = \omega_1 + \eta \frac{\omega_1}{\omega_2} (\Omega_2 - \omega_2) \quad . \quad (24)$$

Si on a deux systèmes à trois niveaux  $i$  et  $j$ , l'écart de fréquence entre les deux résonances correspondantes est :

$$\Omega_1^R(i) - \Omega_1^R(j) = [\omega_1(i) - \omega_1(j)] - \eta \frac{\omega_1}{\omega_2} [\omega_2(i) - \omega_2(j)] \quad . \quad (25)$$

Si les deux systèmes à 3 niveaux correspondent à deux isotopes différents, l'écart que l'on mesure est une combinaison linéaire des deux déplacements isotopiques. En mesurant cet écart dans le cas où les faisceaux se propagent dans le même sens ( $\eta = +1$ ) puis dans le cas où les faisceaux se propagent en sens inverse ( $\eta = -1$ ), on obtient les valeurs de deux combinaisons linéaires des déplacements isotopiques des deux transitions du système à trois niveaux, valeurs dont on peut déduire chacun des déplacements isotopiques.

Le néon naturel comporte trois isotopes et sa composition est la suivante :  $^{20}\text{Ne}$  : 90,9% ;  $^{21}\text{Ne}$  : 0,3% ;  $^{22}\text{Ne}$  : 8,8%. Des enregistrements en néon naturel (figure 34), nous avons pu déduire les déplacements isotopiques  $\delta\nu = \nu(^{22}\text{Ne}) - \nu(^{20}\text{Ne})$  pour les raies 11522 Å, 6096 Å et 5945 Å (Tableau 6). L'incertitude sur les mesures est essentiellement due aux défauts dans l'échelle en fréquence du laser à colorant et aux dérives de fréquence du laser I.R. au cours d'un balayage.

		$2s_2 \rightarrow 2p_4$	$2p_4 \rightarrow 1s_4$	$2p_4 \rightarrow 1s_5$
ce travail	[68]	$258 \pm 6$	$1740 \pm 12$	-
		$261 \pm 6$	-	$1731 \pm 12$
Mesures Antérieures	[63]	$257 \pm 8$	$1706 \pm 30$	-
	[100]	$261 \pm 3$	-	-
	[13]	-	1728	1716

Tableau 6 : Déplacements isotopiques  $^{22}\text{Ne} - ^{20}\text{Ne}$  (en MHz)

On peut remarquer sur la figure 34 que, alors que le rapport des abondances du  $^{20}\text{Ne}$  et du  $^{22}\text{Ne}$  est de 10,3, le rapport des intensités des résonances correspondantes est très inférieur à cette valeur. Le fait que le laser I.R. soit centré en fréquence sur le  $^{20}\text{Ne}$  défavorise le  $^{22}\text{Ne}$  et ne peut expliquer l'intensité trop grande de la résonance correspondant à cet isotope. La très forte absorption sur le faisceau visible conjointement avec l'observation de la transmission peuvent seuls expliquer le rapport anormal observé pour les intensités.

Nous avons également utilisé des échantillons enrichis en  $^{21}\text{Ne}$  (spin nucléaire 3/2) pour mesurer la structure hyperfine des niveaux  $2s_2$ ,  $2p_4$ ,  $1s_4$  et  $1s_5$ . Dans le cas où chacun des niveaux présente une structure hyperfine, le nombre de cascades à 3 niveaux permises est relativement grand. Avec  $I=3/2$  on attend par exemple 18 résonances pour une cascade  $J = 1 \rightarrow 2 \rightarrow 1$  ( $2s_2 \rightarrow 2p_4 \rightarrow 1s_4$  par exemple) et 21 résonances pour une cascade  $J = 1 \rightarrow 2 \rightarrow 2$  ( $2s_2 \rightarrow 2p_4 \rightarrow 1s_5$  par exemple). La position de la résonance correspondant à une cascade donnée  $F_2 \rightarrow F_1 \rightarrow F_0$  est obtenue en utilisant (25) :

$$\begin{aligned} \Omega_1^R (F_2 \rightarrow F_1 \rightarrow F_0) = & \Omega_1^R ({}^{21}\text{Ne}) + \left\{ \frac{1}{2} K_1 A_1 + Q_1 B_1 - \frac{1}{2} K_0 A_0 - Q_0 B_0 \right\} \\ & - \eta \frac{\omega_1}{\omega_2} \left\{ \frac{1}{2} K_2 A_2 + Q_2 B_2 - \frac{1}{2} K_1 A_1 - Q_1 B_1 \right\} \end{aligned} \quad (26)$$

$A_i$  et  $B_i$  sont respectivement les constantes de structure hyperfine dipolaire magnétique et quadrupolaire électrique.

$$K_i = F_i(F_i+1) - J_i(J_i+1) - I(I+1)$$

$$Q_i = \left[ \frac{3}{4} K_i(K_i+1) - I(I+1) J_i(J_i+1) \right] / 2I(2I-1) J_i(2J_i-1)$$

$\Omega_1^R ({}^{21}\text{Ne})$  est la position de la résonance que l'on obtiendrait pour le  $^{21}\text{Ne}$  s'il n'y avait pas de structures hyperfines ( $A_i = B_i = 0$ ;  $i = 0, 1, 2$ ). Si l'échantillon contient aussi du néon 20 par exemple, on a :

$$\begin{aligned} \Omega_1^R(^{21}\text{Ne}) - \Omega_1^R(^{20}\text{Ne}) &= [\omega_1(^{21}\text{Ne}) - \omega_1(^{20}\text{Ne})] \\ &\quad - \eta \frac{\omega_1}{\omega_2} [\omega_2(^{21}\text{Ne}) - \omega_2(^{20}\text{Ne})] \quad . \quad (27) \end{aligned}$$

Les quantités entre crochets dans (33) représentent en fait les déplacements isotopiques  $^{21}\text{Ne} - ^{20}\text{Ne}$  pour chacune des deux transitions.

Nous avons utilisé deux échantillons différents dont la composition isotopique est la suivante : 91%  $^{21}\text{Ne}$ , 5,7%  $^{22}\text{Ne}$  et 3,3%  $^{20}\text{Ne}$  pour le premier échantillon ; 94%  $^{21}\text{Ne}$ , 4,8%  $^{22}\text{Ne}$  et 1,2%  $^{20}\text{Ne}$  pour le deuxième échantillon. Les spectres obtenus sont montrés sur les figures 36 et 37 ; on peut remarquer que la résolution et le rapport signal sur bruit sont bien meilleurs que dans une expérience antérieure réalisée sur le système  $2s_2 \rightarrow 2p_4 \rightarrow 1s_4$  avec une technique d'affinement des raies de fluorescence (F.L.N.) (comparer le spectre de la figure 37 et celui présenté sur la figure 4 de [47]). Toutes les composantes attendues ne sont pas visibles soit parce que les probabilités de transitions correspondantes sont très faibles, soit parce qu'elles se trouvent trop loin dans la largeur Doppler (vitesses concernées très grandes). Les composantes bien résolues ont été identifiées en utilisant les valeurs calculées par S. Liberman pour les A et B des niveaux [15, 18]. A partir d'un ensemble de spectres semblables à ceux des figures 36 et 37 nous avons obtenu les valeurs des constantes A et B des 4 niveaux  $2s_2$ ,  $2p_4$ ,  $1s_4$  et  $1s_5$  (Tableau 7). Les détails concernant la manière dont nous sommes passés des écarts mesurés aux valeurs des constantes sont indiqués dans la référence [49].

L'accord avec les mesures antérieures est excellent (sauf pour B ( $2s_2$ )) et on peut remarquer que l'on retrouve, avec notre technique A.L.N., un ensemble de résultats obtenus précédemment avec de nombreuses autres techniques expérimentales (spectroscopie interférentielle, résonance magnétique sur jet atomique, croisement de niveaux, spectroscopie laser sur jet atomique). L'existence de nombreuses résonances permet de déterminer avec précision les constantes A et B car on peut



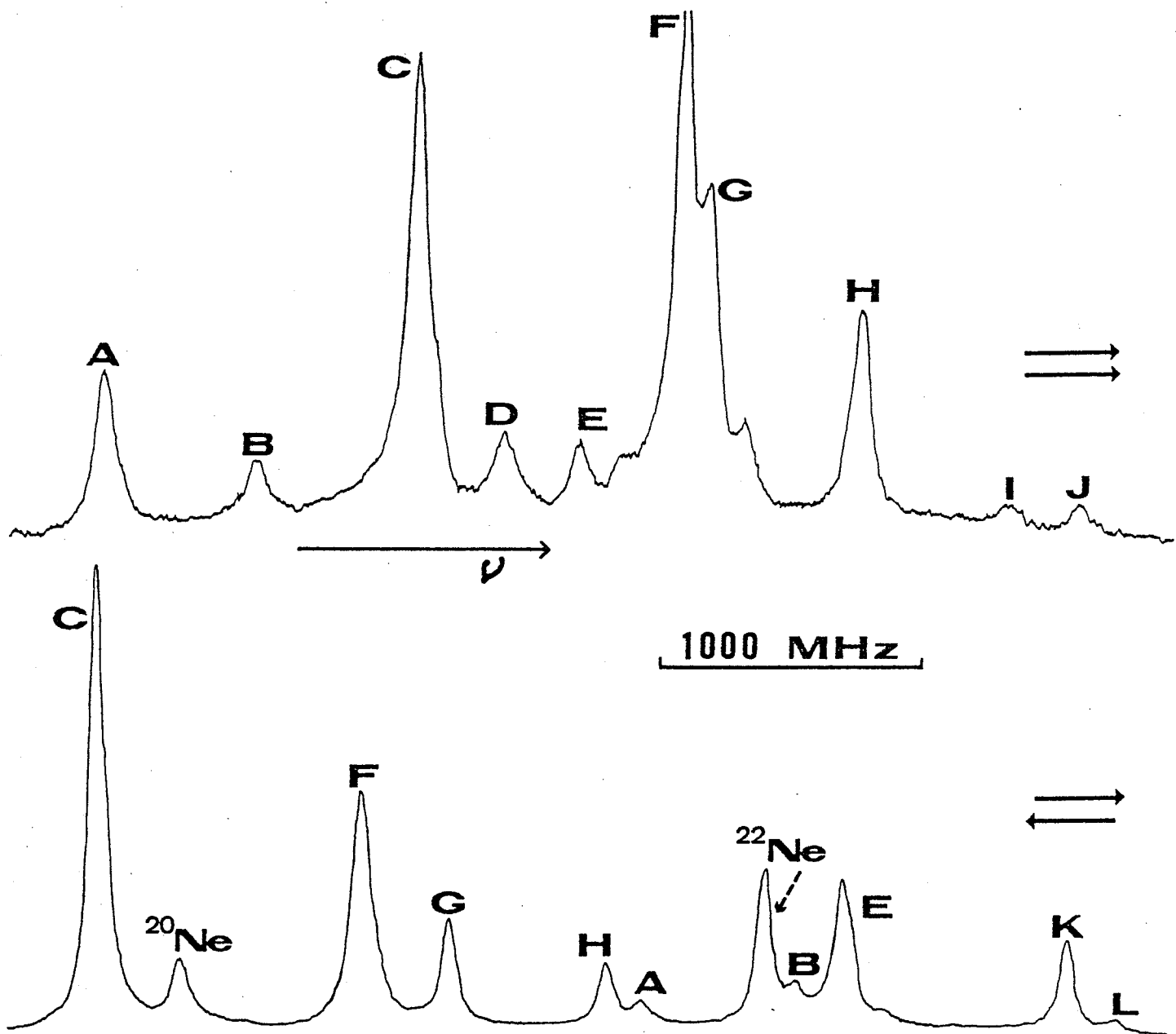
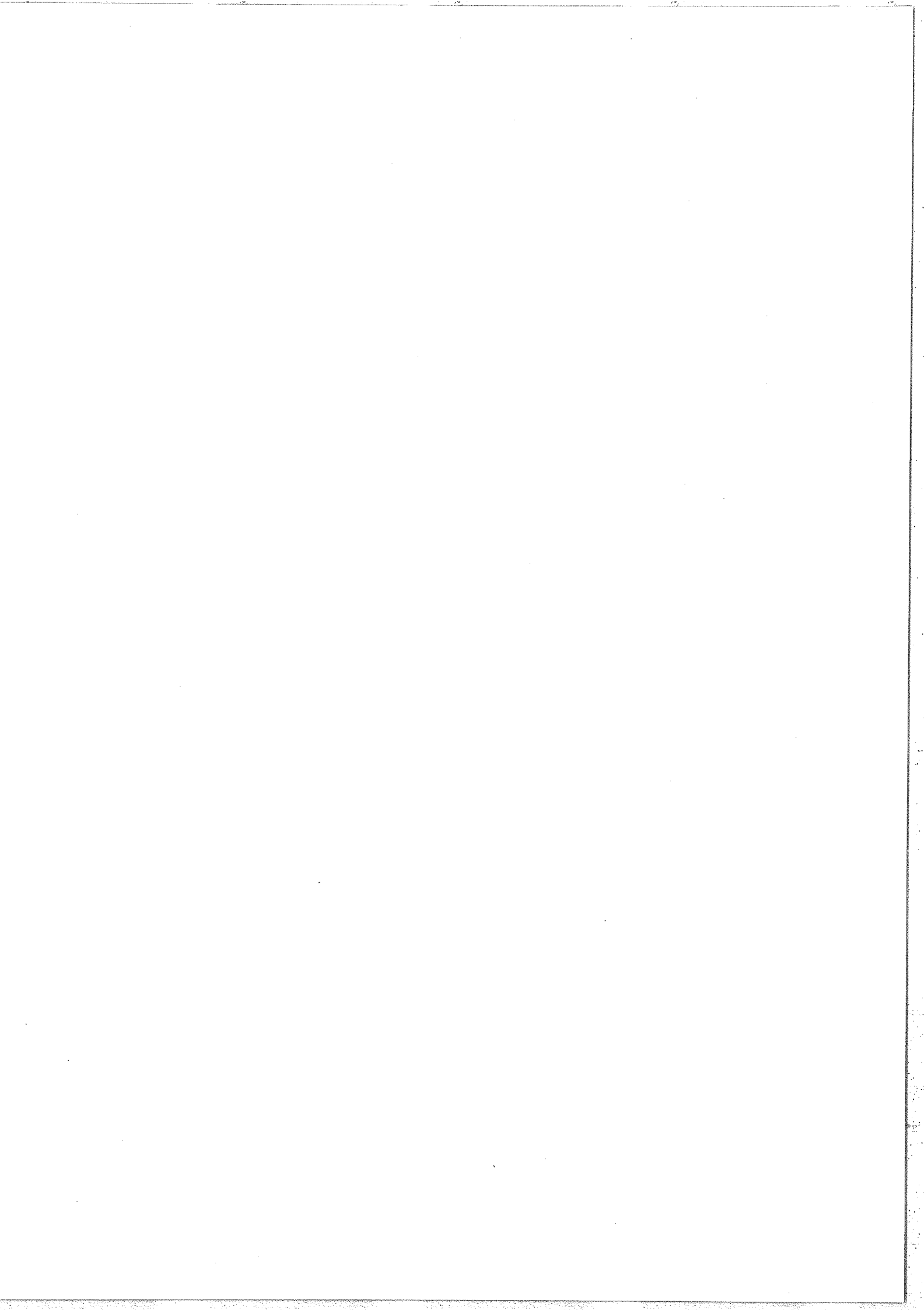


Figure 36 : Système à 3 niveaux  $2s_2 \rightarrow 2p_4 \rightarrow 1s_5$  . Structure hyperfine de  $^{21}\text{Ne}$  .

$$\begin{aligned}
 A &= \left( \frac{3}{2} \frac{5}{2} \frac{3}{2} \right) ; B = \left( \frac{3}{2} \frac{5}{2} \frac{5}{2} \right) ; C = \left( \frac{5}{2} \frac{7}{2} \frac{5}{2} \right) ; D = \left( \frac{1}{2} \frac{1}{2} \frac{1}{2} \right) ; \\
 E &= \left( \frac{1}{2} \frac{1}{2} \frac{3}{2} \right) ; F = \left( \frac{5}{2} \frac{7}{2} \frac{7}{2} \right) ; G = \left( \frac{3}{2} \frac{3}{2} \frac{3}{2} \right) ; H = \left( \frac{3}{2} \frac{3}{2} \frac{5}{2} \right) ; \\
 I &= \left( \frac{3}{2} \frac{1}{2} \frac{1}{2} \right) ; J = \left( \frac{3}{2} \frac{1}{2} \frac{3}{2} \right) ; K = \left( \frac{3}{2} \frac{5}{2} \frac{7}{2} \right) ; L = \left( \frac{1}{2} \frac{3}{2} \frac{5}{2} \right) .
 \end{aligned}$$



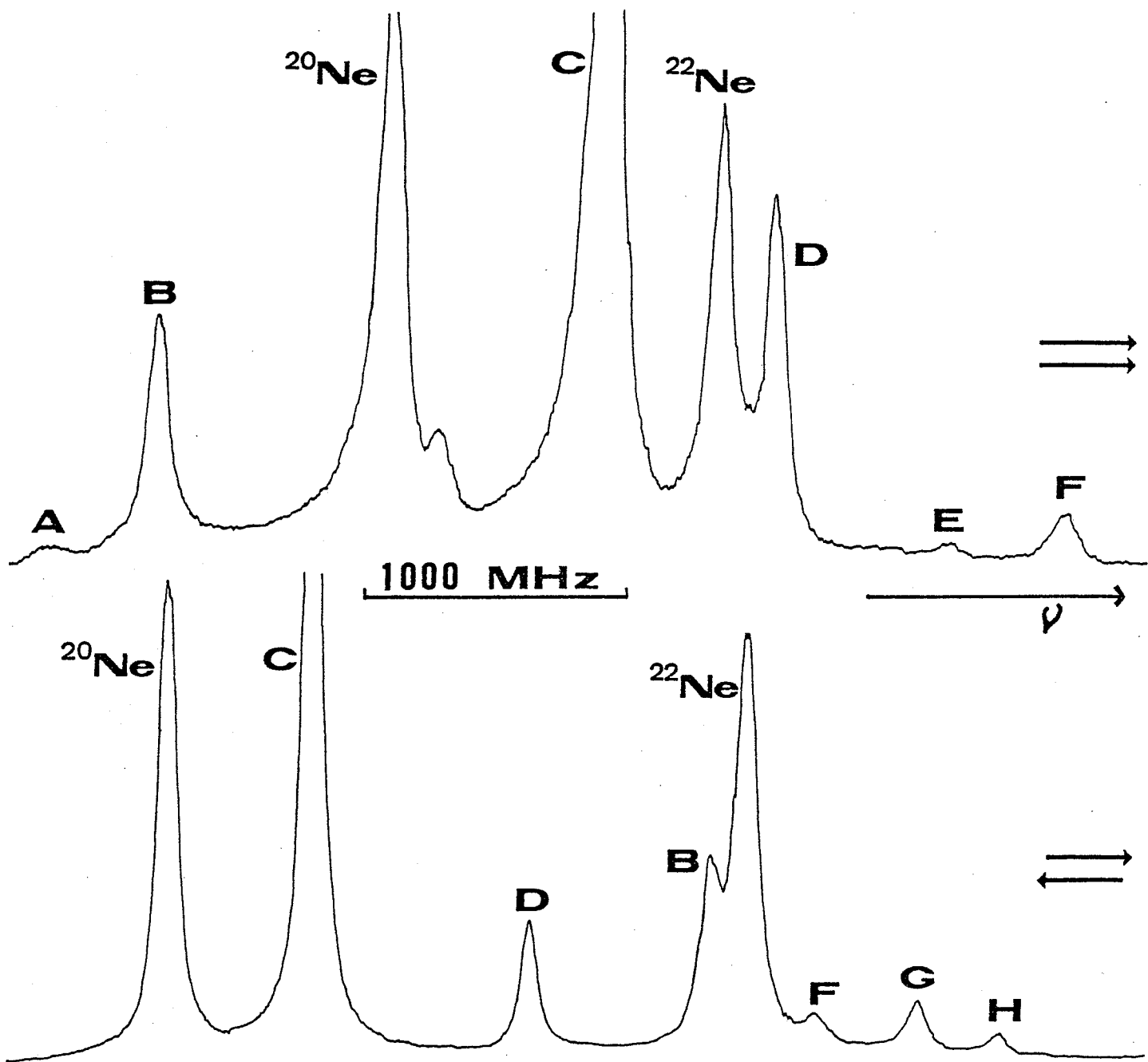
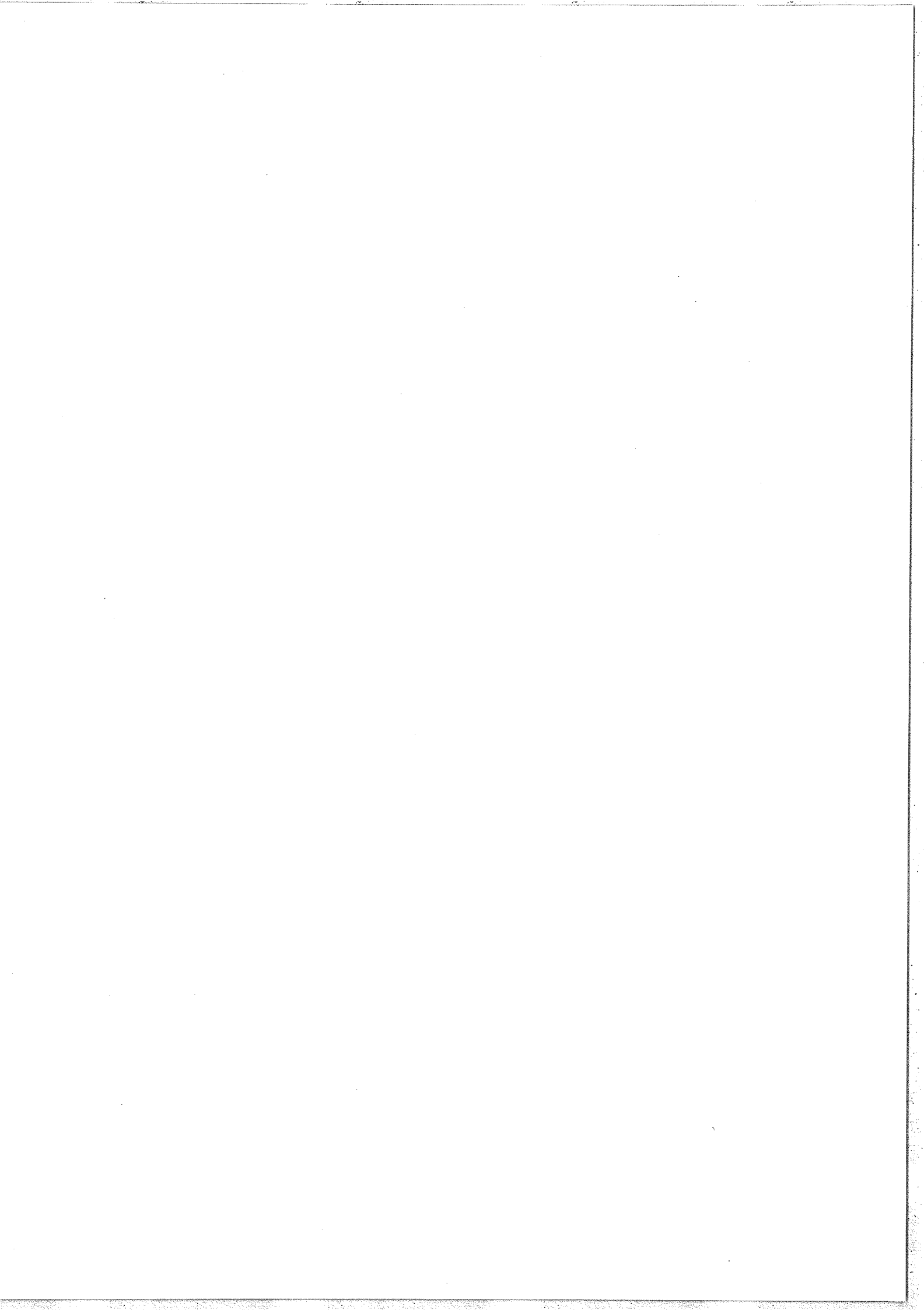


Figure 37 : Système à 3 niveaux  $2s_2 \rightarrow 2p_4 \rightarrow 1s_4$  . Structure hyperfine de  $^{21}\text{Ne}$  .

$$A = \left( \frac{1}{2} \frac{3}{2} \frac{1}{2} \right) ; B = \left( \frac{3}{2} \frac{5}{2} \frac{3}{2} \right) ; C = \left( \frac{5}{2} \frac{7}{2} \frac{5}{2} \right) ; D = \left( \frac{3}{2} \frac{3}{2} \frac{3}{2} \right) ;$$

$$E = \left( \frac{3}{2} \frac{1}{2} \frac{1}{2} \right) ; F = \left( \frac{3}{2} \frac{3}{2} \frac{5}{2} \right) ; G = \left( \frac{1}{2} \frac{1}{2} \frac{3}{2} \right) ; H = \left( \frac{3}{2} \frac{5}{2} \frac{5}{2} \right) .$$



ce travail [49]	$2s_2$		$2p_4$		$1s_4$		$1s_5$	
	A	B	A	B	A	B	A	B
	$-744 \pm 3$	$-29 \pm 2$	$-308,6 \pm 1,5$	$45 \pm 6$	$-460 \pm 4$	$33 \pm 8$	$-267,2 \pm 2,3$	$-115 \pm 10$
[46]	-	-	-	-	-480	30	-270	-120
[43]	-	-	-	-	-	-	$-267,68 \pm 0,03$	$-111,55 \pm 0,10$
[47]	$-756 \pm 15$	-39	$-219 \pm 3$	15	$-452 \pm 7$	44	-	-
[48]	-	-	$-309,5 \pm 1,1$	$49,1 \pm 0,6$	-	-	-	-
[28]	-	-	$-313 \pm 5$	$45 \pm 6$	-	-	-	-
[41]	-	-	$-312 \pm 9$	$ B  < 60$	$-462 \pm 6$	$39 \pm 9$	-	-
[42]	$-741 \pm 6$	$-39 \pm 6$	$-312 \pm 12$	$51 \pm 33$	-	-	-	-
calcul [15, 18]	$-735,2$	$-38,1$	$-301,8$	$48,0$	$-444,3$	$44,1$	$-267,9$	$-111,6$

Tableau 7 : Constantes A et B (en MHz) mesurées pour quelques niveaux de  $^{21}\text{Ne}$  ( $I=3/2$ ).

mesurer un grand nombre d'écartés (la précision est limitée par l'échelle de fréquence principalement), il faut cependant souligner que le problème d'identification des résonances n'est pas nécessairement facile à résoudre. Pour calculer les intensités relatives des composantes il faudrait tenir compte, à la fois, des probabilités de transition entre sous-niveaux hyperfins, de la dégénérescence, de la polarisation des lasers, des largeurs Doppler finies et de l'absorption importante sur le faisceau visible (liée à nos conditions expérimentales particulières); de plus on ne peut pas, dans la plupart des cas, raisonner à partir de systèmes à trois niveaux indépendants les uns des autres.

On prévoit facilement, en se basant sur les probabilités de transition et sur les positions par rapport aux courbes Doppler, quelles sont les composantes les plus intenses que l'on doit observer ; il est néanmoins utile, sinon indispensable, d'avoir une idée de la valeur des constantes de structure hyperfine pour que le problème d'identification ne devienne pas inextricable. Si cette difficulté (qui n'est pas propre à notre méthode) peut être surmontée, la spectroscopie dans les systèmes à trois niveaux peut prétendre à une place de choix dans l'ensemble des techniques de spectroscopie sans effet Doppler.

## 2° - Expériences utilisant deux lasers à colorant.

Les expériences que nous allons maintenant présenter ont constitué en fait un certain nombre de préliminaires aux études des Chapitres C et D . Nous les présentons néanmoins pour illustrer et discuter les possibilités et les limites de la spectroscopie dans les systèmes à trois niveaux. Les formes de raies ne sont pas toujours aussi simples que dans le cas longuement étudié précédemment. On observe par exemple les formes de résonances très particulières prévues dans l'étude théorique (fig. 39b) ainsi que des effets très importants dus aux collisions (fig. 41).

## a) Les lasers.

Nous avons, selon le cas, utilisé deux lasers commerciaux (jet stream Spectra Physics modèle 580) ou un laser commercial et un laser construit au laboratoire [21]. Dans les deux cas le colorant utilisé est la rhodamine 6G et les lasers fonctionnent sur un seul mode longitudinal  $TEM_{k00}$ . Le laser construit au laboratoire est piloté par un sigmamètre qui, comme indiqué précédemment, permet à la fois le contrôle de la fréquence du laser et l'étalonnage des variations de cette fréquence au cours des balayages.

Les lasers commerciaux utilisés ne sont pas asservis en fréquence, un asservissement de la longueur de l'étalon situé à l'intérieur de la cavité permet cependant d'éviter les sauts de mode au cours d'un balayage. L'étalonnage en fréquence est donné par un F. P. sphérique de 1 m de long (intervalle spectral libre 75 MHz) dont la température est stabilisée. Avec deux lasers commerciaux totalement indépendants, nous avons enregistré dans le meilleur des cas des largeurs inférieures à 20 MHz (largeur naturelle + effets de pression + jitter des lasers +...)

## b) Les montages expérimentaux.

Trois exemples de montages utilisés sont donnés sur la figure 38. Dans tous les cas on module mécaniquement le faisceau saturant et on utilise une détection synchrone pour n'observer que les modifications de la transmission du faisceau sonde provoquées par la présence du laser saturant. Comme dans les expériences précédentes, une méthode différentielle permet de minimiser l'influence des fluctuations d'intensité du laser sonde. On enregistre le signal de sortie de l'amplificateur à détection synchrone en fonction de la fréquence du laser sonde.

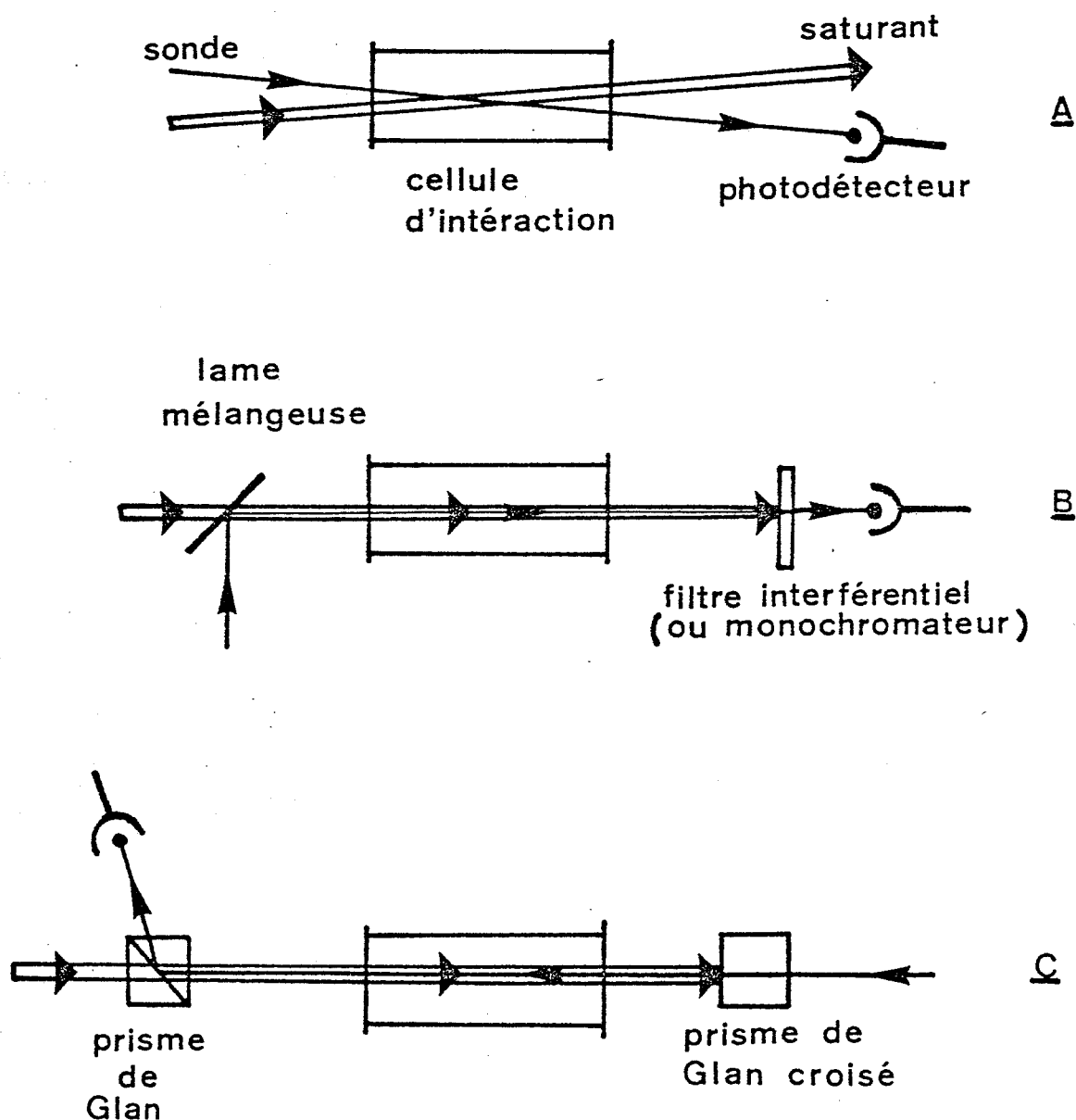


Figure 38 : Montages expérimentaux utilisés dans les expériences avec deux lasers à colorant.

c) Exemples de signaux obtenus.

Les courbes expérimentales correspondant à différents systèmes à trois niveaux sont montrées sur les figures 39 à 41. Elles se présentent sous l'aspect de superposition de courbes semblables à celles de la figure 29, le poids affecté à chaque courbe étant déterminé par les différences de population  $(n_1 - n_0)$  et  $(n_2 - n_1)$  ainsi que par la valeur du paramètre  $S = -\varepsilon k_2/k_1$  pour le système étudié (formules (19) et tableau 5).



La figure 39 illustre l'effet sur la courbe de résonance de l'échange du rôle des deux lasers ; dans ce cas particulier on passe ainsi de  $S_a = 0.95$  à  $S_b = 1/S_a = 1.05$ . Des courbes analogues à celle de la figure 39b ont été publiées précédemment par P. Toschek et ses collaborateurs [66] et par Cahuzac et Vetter [101].

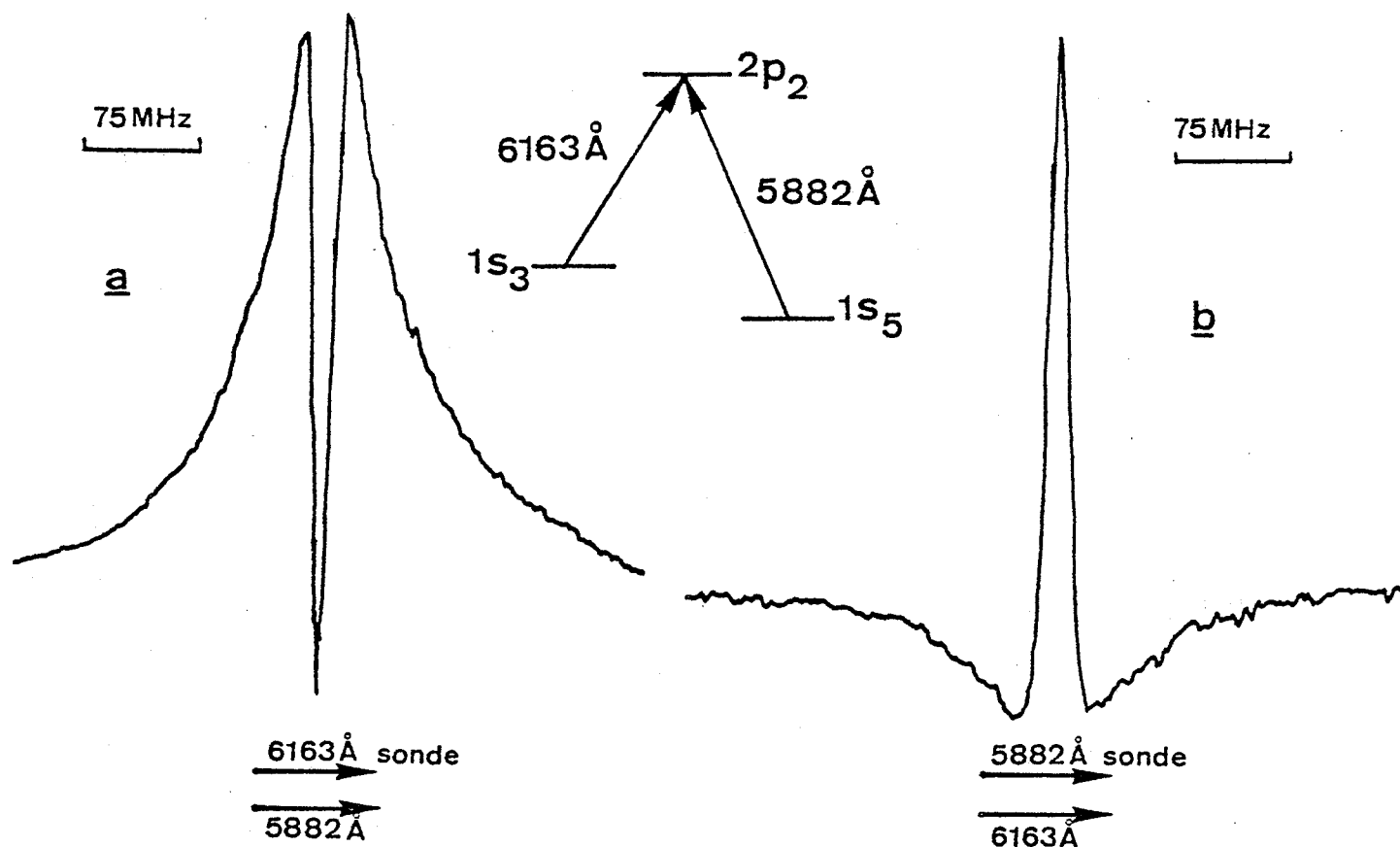


Figure 39 : Exemple de courbes de résonances données par un système à trois niveaux.

La figure 40 constitue un nouvel exemple de la modification des signaux de résonance due au changement du sens de propagation relatif des deux faisceaux laser. Les largeurs enregistrées pour les courbes

de résonances avec des faisceaux parallèles et avec des faisceaux anti-parallèles sont respectivement  $\Gamma_a = 83$  MHz et  $\Gamma_b = 41$  MHz. Dans ce cas là le rapport des fréquences  $\rho = \omega_2/\omega_1 = 0.986$  est très voisin de 1 et on a  $\Gamma_N \approx \frac{\Gamma_0 + \Gamma_2}{2}$  et  $\Gamma_B = \Gamma_N + \Gamma_1$  (à pression nulle). On atteint dans ce cas les mêmes niveaux que dans l'absorption à deux photons sans effet Doppler [50, 102, 103] et, en utilisant des faisceaux se propageant en sens inverse, la largeur de la résonance est celle correspondant à la transition interdite  $0 \leftrightarrow 2$ . La probabilité de transition est beaucoup plus forte que pour l'absorption à deux photons de même fréquence

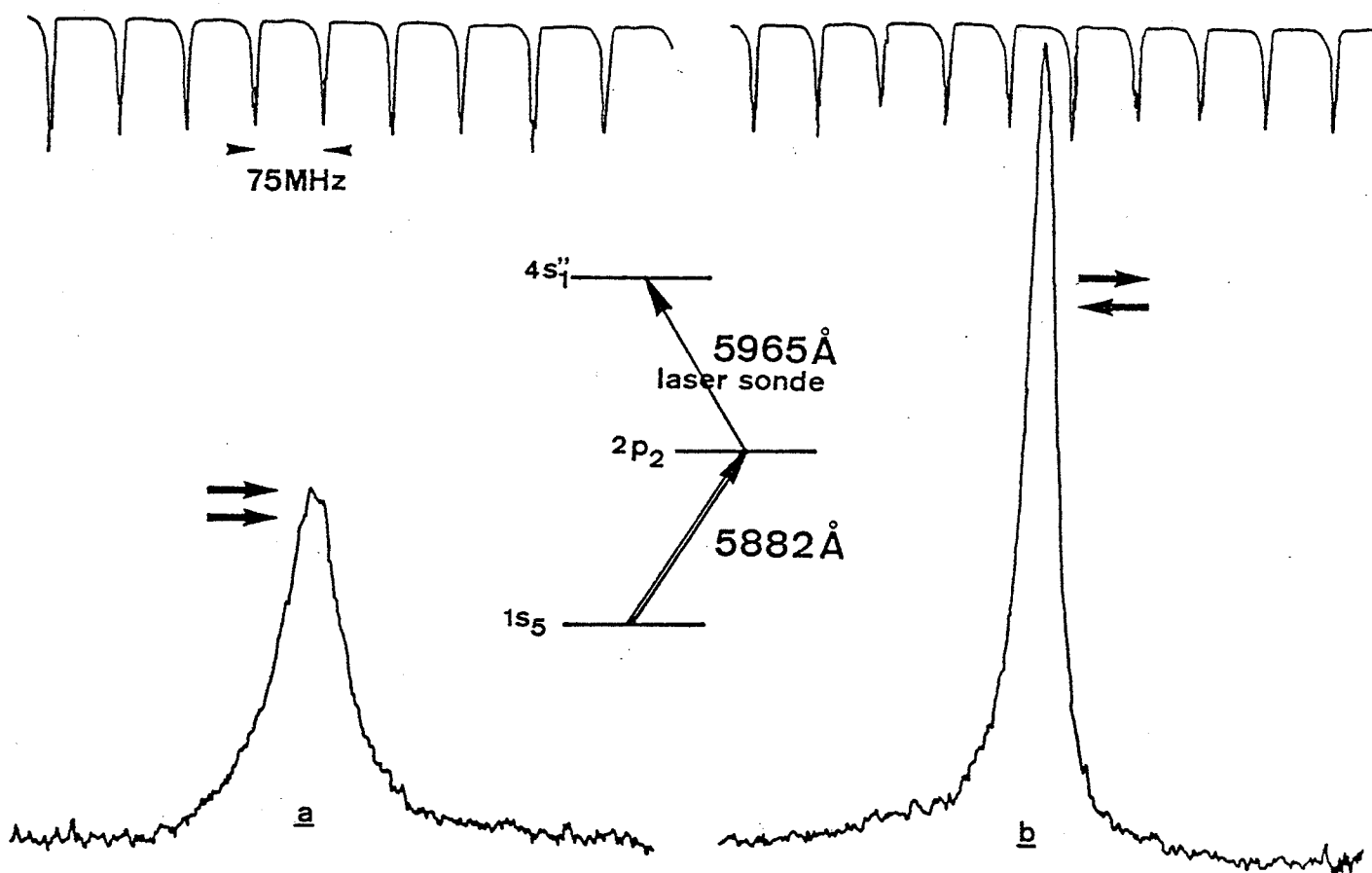


Figure 40 : Exemple de courbes de résonance données par un système à trois niveaux (dans le cas a) l'intensité du faisceau sonde est environ 85% de l'intensité correspondante dans le cas b) ; l'intensité du faisceau saturant est la même dans les deux cas). En prenant en compte ce facteur, le rapport  $\rho = (\text{Amplitude} \times \text{Largeur})_b / (\text{Amplitude} \times \text{Largeur})_a$  a une valeur expérimentale de 0,97 ; la valeur théorique attendue dans ce cas (cascade,  $n_2 = n_1$ ) est de 1.

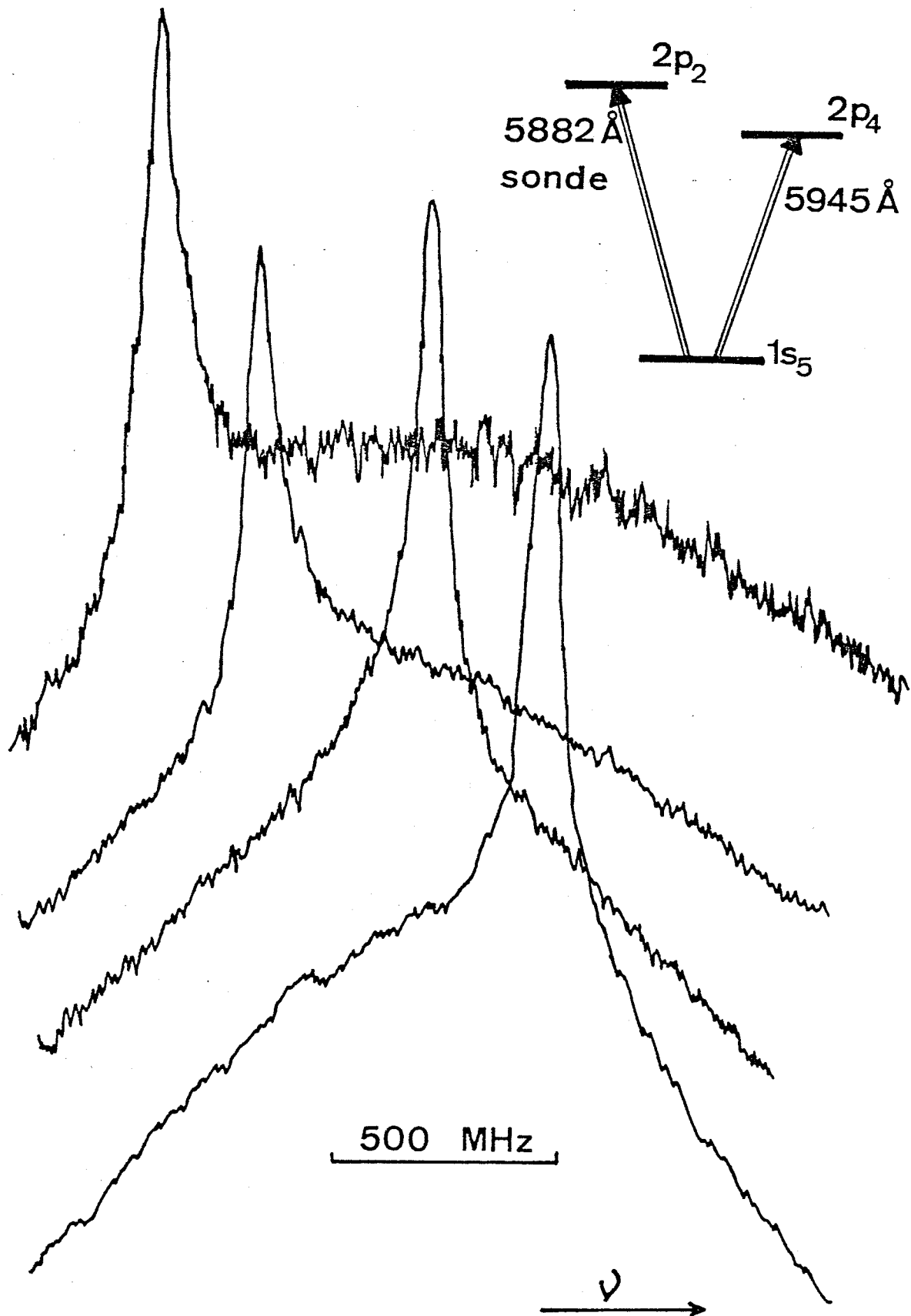
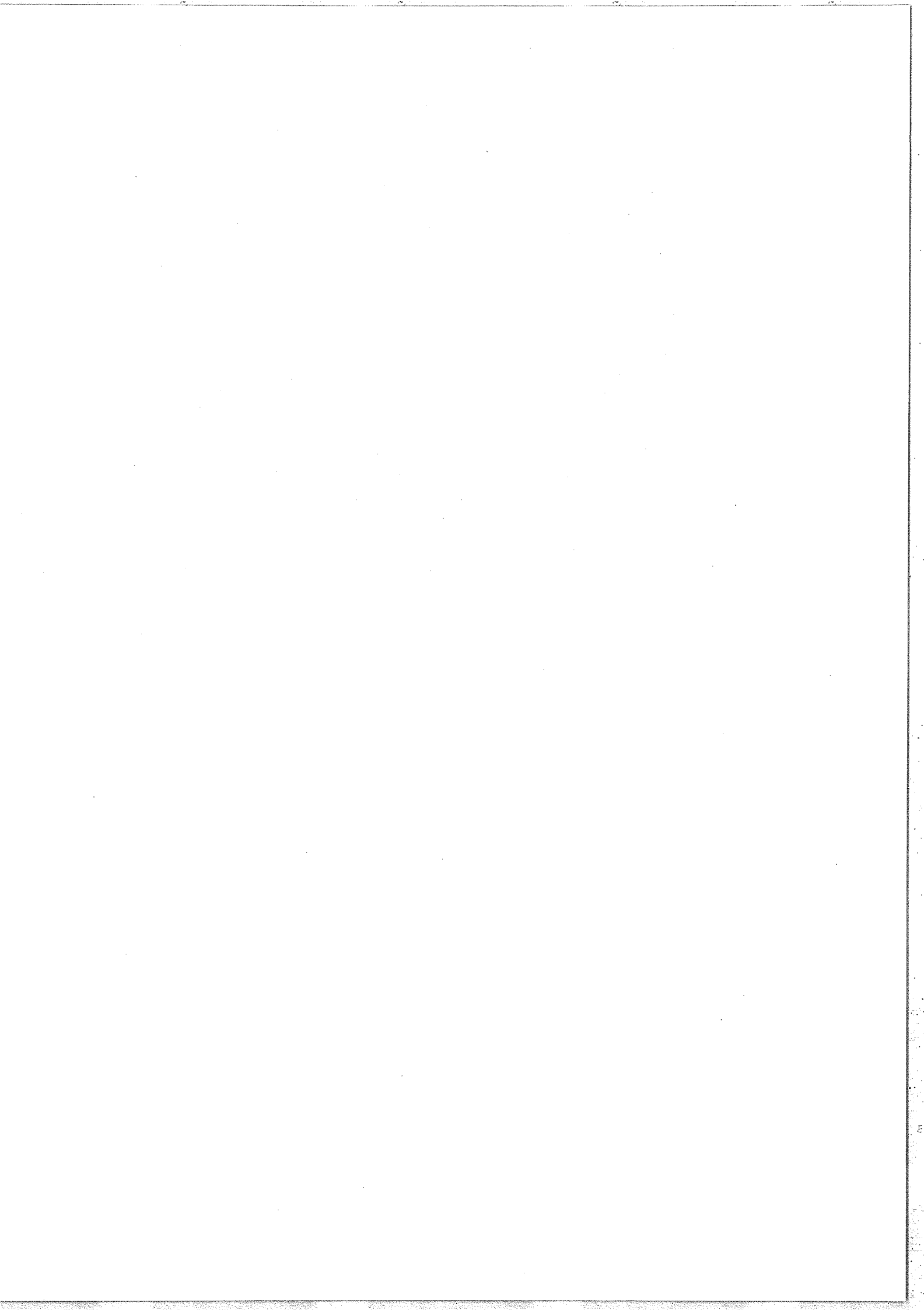


Figure 41 : Exemple de courbes de résonance données par un système à trois niveaux (Les amplitudes relatives des différentes courbes ne sont pas significatives).



$\omega_3 = \frac{\omega_1 + \omega_2}{2}$  [69, 70] mais il faut rappeler que la position des résonances fait intervenir la structure des trois niveaux (formule (4)), ce qui peut compliquer le dépouillement des spectres.

La figure 41 montre comment les collisions qui produisent une rethermalisation des vitesses des atomes pompés peuvent modifier l'allure des résonances.

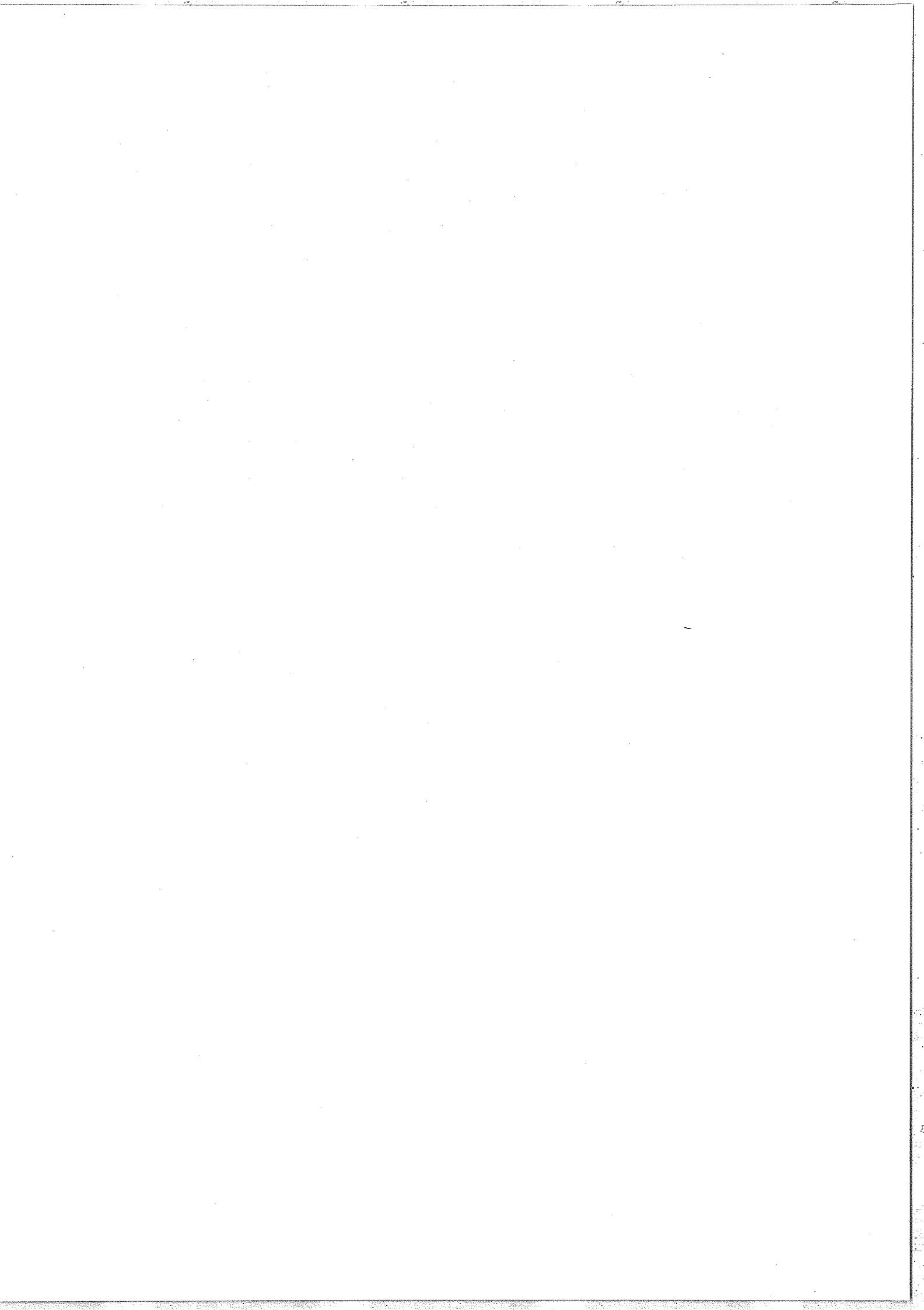
Dans le cas particulier étudié le niveau commun aux deux transitions est un niveau métastable de très longue durée de vie et la courbe expérimentale se présente sous la forme d'une résonance étroite superposée à un fond très large et intense. De telles formes de raie sont bien connues en absorption saturée [89] mais ont été rarement observées dans les systèmes à trois niveaux [67]. Si le laser saturant n'est pas à la résonance pour la transition  $0 \rightarrow 1$  ( $\delta_1 \neq 0$ ), le pic étroit correspond à des atomes de vitesses  $v_1 = \delta_1/k_1 \neq 0$  alors que le fond Doppler est centré sur  $v=0$ . Les courbes représentées sur la figure 41 illustrent ce phénomène : on change la position relative des deux courbes en changeant la valeur du désaccord de fréquence  $\delta_1$ . Entre chacun des enregistrements de la figure 41 on a fait varier la fréquence du laser de 390 MHz ce qui correspond à un changement de la vitesse  $v_1$  concernée de 37 m/s.

Pour des applications strictement spectroscopiques telles que des mesures de déplacements isotopiques ou de structures hyperfines, des courbes de résonance comme celles des figures 39 et 41 ne seront guère utilisables. On peut d'ailleurs remarquer que les seules mesures spectroscopiques utilisant les systèmes à trois niveaux (double résonance optique-optique) ont été réalisées sur des systèmes en cascade [47, 49, 70]. Dans ce cas on a en général  $n_0 \gg n_1, n_2$  et les résonances ont des formes de Lorentz de largeurs différentes selon les sens de propagation relatif des lasers. Si on opère avec deux lasers à colorant continus on se trouve, avec un système en cascade, dans une situation très comparable à celle des transitions à deux photons sans

effet Doppler pour ce qui concerne l'étude des niveaux excités. Dans le cas où les deux lasers se propagent en sens opposés, la contribution de la largeur homogène  $\Gamma_1$  du niveau commun se trouve réduite d'un facteur  $(1 - \frac{\omega_2}{\omega_1})$ . La probabilité de transition du niveau 0 au niveau 2 est telle que l'on peut travailler avec des densités de puissance laser très modestes et éviter ainsi l'élargissement par saturation qui peut diminuer la résolution dans une expérience à 3 niveaux et les déplacements lumineux qui peuvent provoquer des erreurs systématiques dans les expériences à 2 photons (à cause des fortes densités de puissance) et éventuellement dans les expériences à 3 niveaux (à cause de la faible valeur du désaccord de fréquence  $\delta$ ). De plus, on peut détecter les résonances soit en observant l'émission spontanée à partir du niveau 2, soit en mesurant l'absorption sur le faisceau sonde. Quand on opère dans une décharge, il est souvent plus facile et préférable de détecter une absorption ; on peut alors opérer à partir d'un niveau excité (niveau 0) métastable ou même résonnant sans difficultés. Pour toutes ces raisons, il semble que dans un certain nombre de cas l'utilisation de systèmes à trois niveaux en cascade soit largement concurrentiel avec les transitions à deux photons pour obtenir des spectres à très haute résolution dans les vapeurs atomiques.

Un autre prolongement naturel de la spectroscopie sans effet Doppler dans les systèmes à trois niveaux est l'étude des effets des collisions sur la forme des résonances dans le but d'en tirer diverses sections efficaces [67, 104, 105]. Sélectionner une classe de vitesse particulière peut permettre d'observer notamment l'effet des collisions qui changent la vitesse sur la forme de raie [83, 105, 106]. Des expériences intéressantes ont été proposées pour démontrer l'effet de telles collisions sur les cohérences optiques [83] et également pour mettre en évidence la relation entre réorientation des sous-niveaux Zeeman sous l'effet des collisions et changement de vitesse [104].

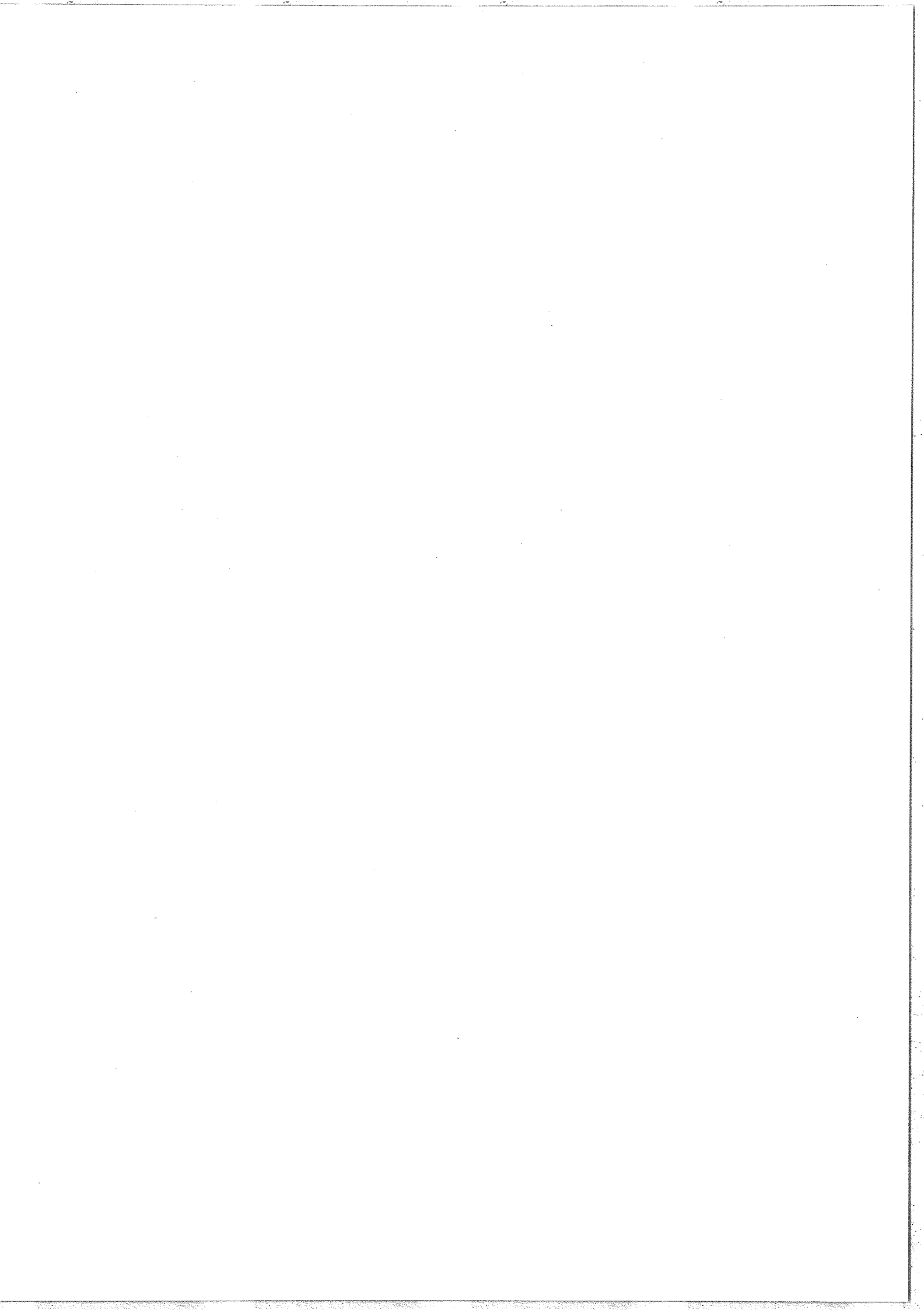
Pour notre part, nous avons choisi de poursuivre notre étude des systèmes à 3 niveaux dans une autre voie mettant plus l'accent sur l'interaction entre l'atome et le rayonnement monochromatique, polarisé et intense. Nous nous sommes tout d'abord intéressés aux "effets de puissance". Ceci nous a conduits à discuter théoriquement et à étudier expérimentalement l'effet Stark dynamique (effet Autler-Townes) optique tel qu'on peut l'observer dans une expérience en phase vapeur ; l'ensemble de cette étude est exposé dans le Chapitre C . Nous avons également étudié des "effets de polarisations" et plus particulièrement l'anisotropie introduite dans une vapeur atomique par un laser polarisé linéairement (effet Kerr optique) ; les résultats de ces travaux sur le dichroïsme et la biréfringence induits par laser sont exposés dans le Chapitre D.





CHAPITRE C

---



EFFET STARK DYNAMIQUE DANS LES SYSTEMES A TROIS NIVEAUX(effet Autler-Townes optique)

Depuis le travail de Autler et Townes sur la molécule OCS [107], il est bien connu que, dans le domaine microonde, une raie d'absorption moléculaire peut être dédoublée par l'action d'un champ RF intense connectant un des deux niveaux de la transition microonde avec un troisième niveau moléculaire.

Depuis que l'on dispose de lasers monofréquence, accordables en longueur d'onde et intenses, l'extension dans le domaine optique de ce type d'expérience est devenu possible ; dans ce domaine de fréquence il faut prendre en considération à la fois l'effet Doppler et l'émission spontanée.

Plusieurs types d'expériences sont possibles pour observer le dédoublement des niveaux atomiques sous l'action d'un laser intense et quasi-résonnant (effet Stark dynamique). On peut analyser spectralement la fluorescence émise par un jet atomique (utilisé pour supprimer l'effet Doppler) quand il est excité par un laser monochromatique intense [108-111]. On peut, également dans un jet atomique, utiliser un premier laser pour saturer une transition et un deuxième laser de faible puissance (faisceau sonde) pour mesurer l'absorption sur une transition ayant un niveau commun avec la transition saturée [82, 112-115]. On peut enfin faire l'expérience dans une vapeur et s'affranchir de l'effet

Doppler comme nous l'avons indiqué au Chapitre B [101, 116-119] ; c'est ce type de situation que nous allons maintenant discuter en détail en partant du calcul semi-classique exposé précédemment.

De nombreux auteurs ont étudié d'un point de vue théorique les systèmes à trois niveaux en interaction avec deux radiations monochromatiques quasi-résonnantes [71-76, 82, 120-124], mais très peu ont discuté en détail l'effet Autler-Townes tel qu'il peut apparaître dans les systèmes avec élargissement Doppler [76, 82, 85, 125].

Dans l'étude théorique que nous allons présenter maintenant, nous rappellerons, dans un premier temps, les principales caractéristiques de l'effet Autler-Townes optique tel qu'on peut l'observer dans une expérience en jet atomique. Nous passerons ensuite au cas d'une vapeur atomique en tenant compte de l'effet Doppler ; nous présenterons alors une discussion graphique des phénomènes basée sur la recherche des classes de vitesse en résonance. En utilisant des cas particuliers, nous pourrons comparer les résultats de l'étude graphique avec les calculs effectués numériquement sur ordinateur à partir des équations de la matrice densité.

La deuxième partie de ce chapitre sera ensuite consacrée à l'exposé détaillé des études expérimentales que nous avons réalisées et à la comparaison des observations expérimentales avec les prévisions théoriques.

## I. Etude théorique.

### 1° - Atomes immobiles.

Nous considérons le système à trois niveaux étudié au §.B.I.2° en interaction avec un champ saturant intense quasi-résonnant avec la transition  $0 \rightarrow 1$  et un champ sonde faible quasi-résonnant avec la transition couplée  $1 \rightarrow 2$ . On observe les variations de l'absorption du champ sonde produites par la présence du champ saturant.

Le modèle théorique utilisé pour décrire le système a été exposé en détail au §.B.I.2° et nous prendrons donc pour point de départ les équations obtenues précédemment (équations (11)). L'absorption sur la transition sonde est proportionnelle à la partie imaginaire de la susceptibilité électrique dont l'expression, au premier ordre par rapport au champ sonde, est (équation (14)) :

$$\begin{aligned} \text{Im} \left( \frac{\alpha_{21}^{(1)}}{I_2} \right) &= (n_1 - n_2) \text{Re} \left[ \frac{t}{st + w_1^2} \right] \\ &+ (n_1 - n_0) \frac{w_1^2}{G_{rr^*} - G_B(r+r^*) w_1^2} \text{Re} \left[ \frac{-Gr^* + G_A(r+r^*)t}{st + w_1^2} \right] \end{aligned} \quad (28)$$

Cette expression est valable pour une puissance quelconque du laser saturant et va nous permettre de discuter la modification, produite par le champ électrique oscillant du laser saturant (effet Stark dynamique), de la résonance à la fréquence atomique  $\omega_{21}$ .

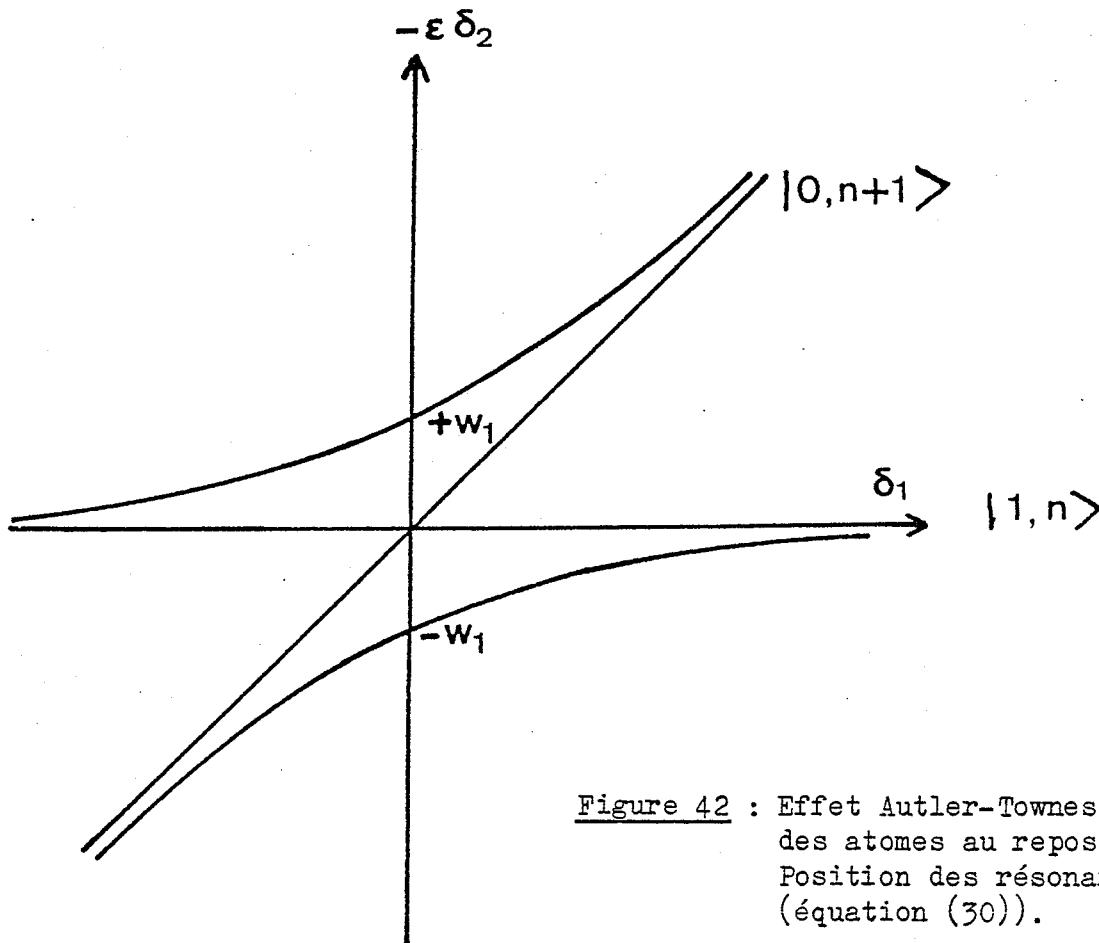
Lorsqu'on fait varier la fréquence  $\Omega_2$  du laser sonde, les termes résonnants dans l'expression (28) sont les quantités  $[st + w_1^2]^{-1}$ . A la limite des champs saturants très forts ( $w_1 \gg \Gamma$ ) la position des résonances est obtenue en annulant la partie réelle de ce dénominateur résonnant [82] :  $\text{Re}(st + w_1^2) = 0$  .

L'équation (29) s'écrit alors :  $\delta_2^2 + \varepsilon \delta_1 \delta_2 - w_1^2 = 0$  ;  $\varepsilon = \varepsilon_1 \varepsilon_2$  est

égal à +1 pour une disposition en cascade des 3 niveaux et est égal à -1 dans les autres cas. On obtient pour les positions des résonances:

$$\varepsilon \delta_2^\pm = \frac{1}{2} [-\delta_1 \pm \sqrt{\delta_1^2 + 4w_1^2}] \quad (30)$$

On retrouve bien les deux résonances Autler-Townes séparées de  $\Delta\delta_2 = \sqrt{\delta_1^2 + 4w_1^2}$ . On trouvera une discussion détaillée de l'effet Autler-Townes pour des atomes au repos dans la référence [82]. La courbe représentant la position des résonances (équation (30)) en fonction de  $\delta_1$  est une hyperbole représentée sur la figure 42 ; on reconnaît là le diagramme d'énergie bien connu de l'atome habillé par les photons du laser saturant [111].



Pour  $|\delta_1|$  très grand ( $|\delta_1| \gg 2w_1$ ) une des deux résonances se trouve au voisinage de  $\delta_2=0$  (transition à 2 étages entre le niveau 0 et le niveau 2, déplacée de  $\frac{\varepsilon w_1^2}{\delta}$ ) tandis que l'autre est au voisinage de

approximation du  
premier ordre

calcul exact

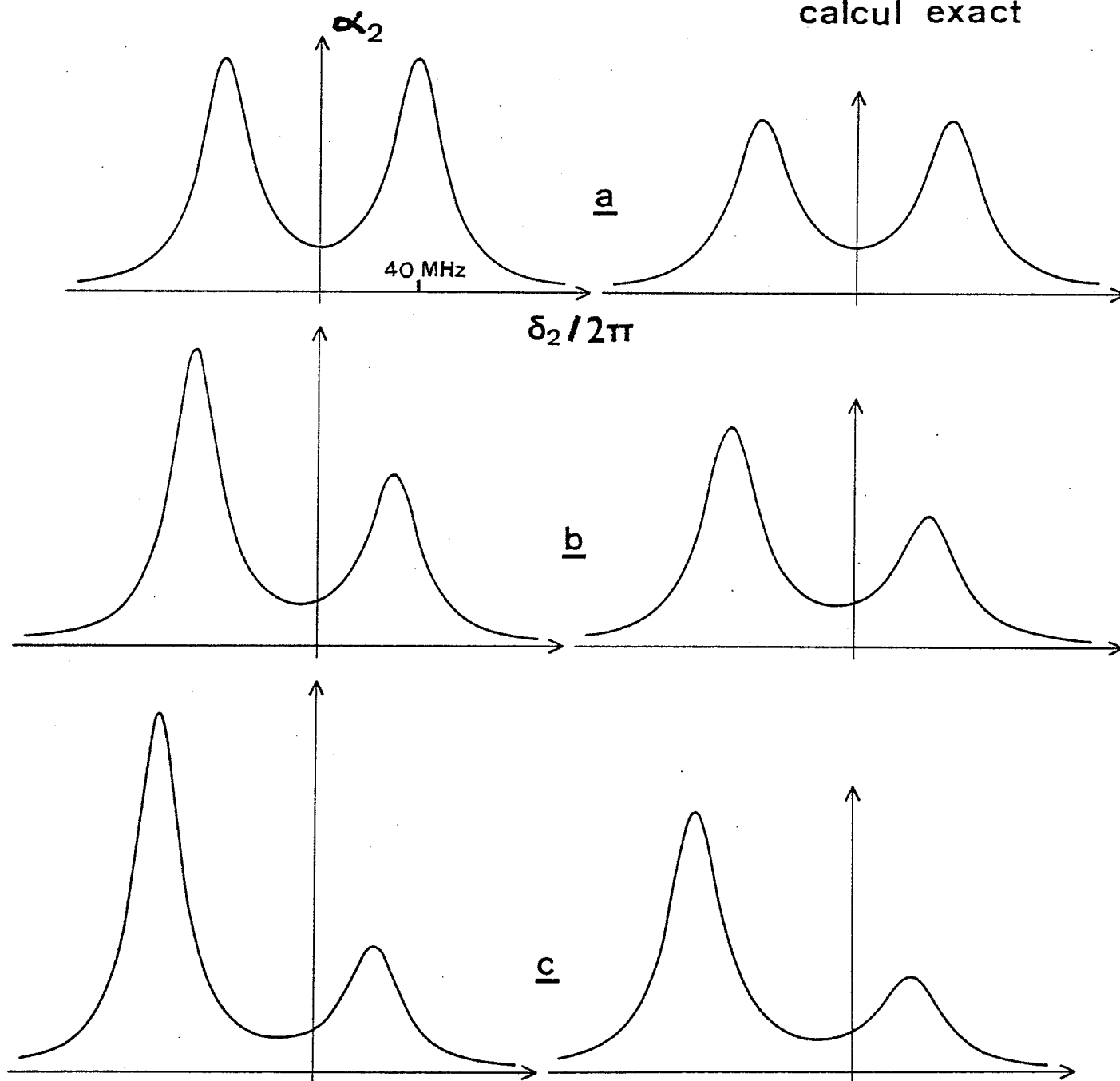
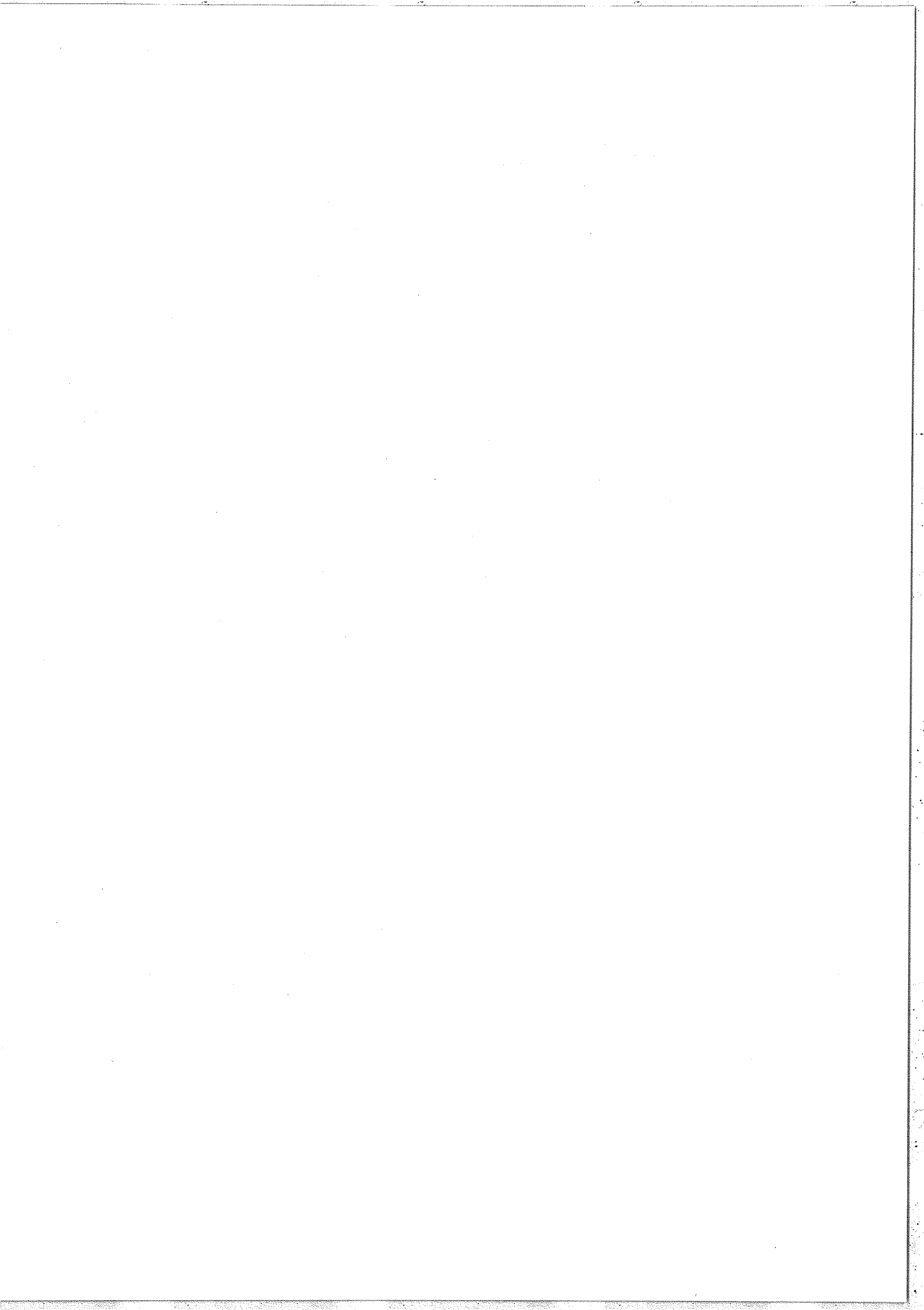


Figure 43 : Courbes calculées pour l'effet Autler-Townes - Atomes  
au repos  
(cascade  $1s_5 \rightarrow 2p_4 \rightarrow 2s_2$  de Ne I ; saturant :  $5945 \text{ \AA}$  ;  
sonde :  $1,15 \mu$  ;  $\frac{w_1}{2\pi} = 40 \text{ MHz}$  ;  $\frac{w_2}{w_1} = 0,1$ ) .





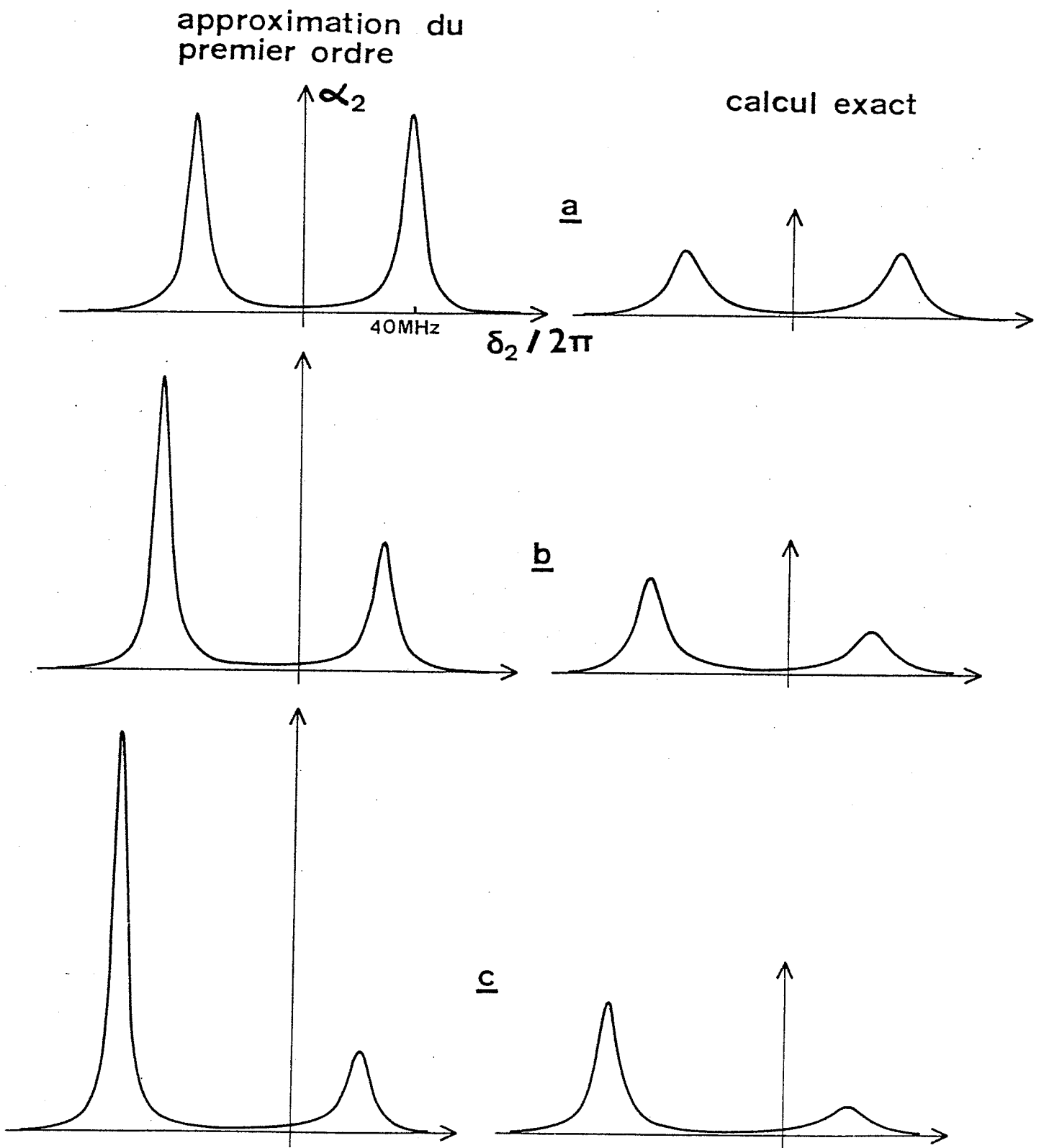
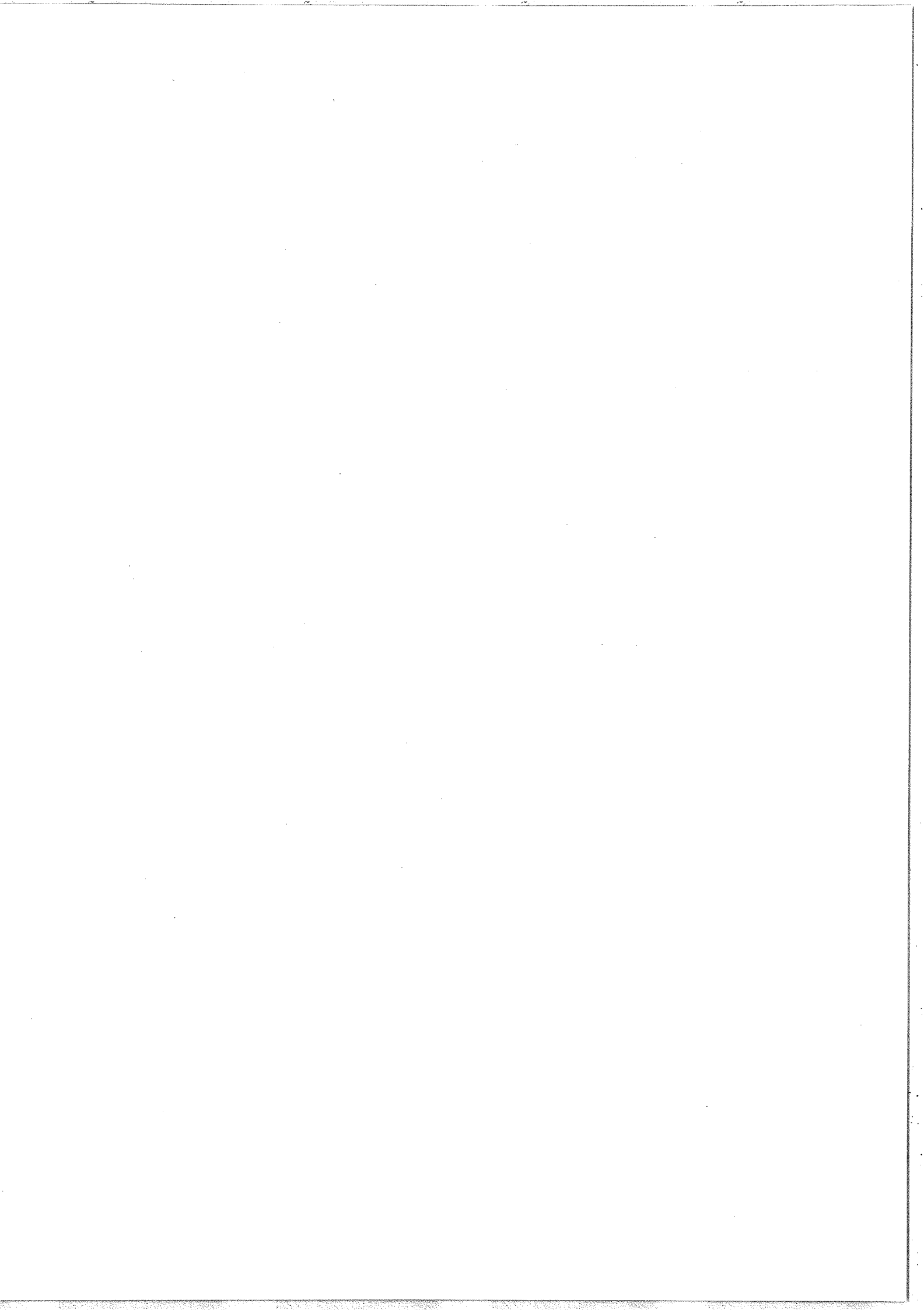


Figure 44 : Courbes calculées pour l'effet Autler-Townes - Atomes au repos  
(cascade  $1s_5 \rightarrow 2p_2 \rightarrow 4s_1''$  de Ne I ; saturant :  $5882 \text{ \AA}$  ;  
sonde :  $5965 \text{ \AA}$  ;  $\frac{w_1}{2\pi} = 40 \text{ MHz}$  ;  $\frac{w_2}{w_1} = 0,1$ ) .



$\delta_2 + \varepsilon \delta_1 = 0$  (transition à deux photons entre 0 et 2, déplacée de  $\frac{-\varepsilon w_1^2}{\delta}$ ). Dans les mêmes conditions, et pour  $\varepsilon > 0$ , la largeur de la 1ère résonance tend vers  $\Gamma_{21}$  et celle de la deuxième vers  $\Gamma_{20}$ , ces deux largeurs pouvant être très différentes dans certains cas (par exemple si  $\Gamma_1 \gg \Gamma_0, \Gamma_2$ ; voir la figure 2 de [82]).

La résolution exacte du système d'équations linéaires (11a)-(11g) ne présente pas de difficultés et permet d'obtenir les courbes de résonances sans avoir à se placer dans l'approximation du champ sonde faible. Les courbes de résonance correspondant à deux systèmes particuliers du néon ont été calculées et sont représentées sur les figures 43 et 44 pour différentes valeurs de  $\delta_1$ . Sur ces figures, nous comparons les courbes obtenues par un calcul exact (résolution du système d'équations (11)) et celles obtenues dans l'approximation du premier ordre par rapport au champ sonde, dans le cas  $w_1 = 10w_2$  (pour des probabilités de transition comparables cela correspond à une densité d'énergie 100 fois plus faible pour le sonde que pour le saturant). Dans le cas représenté sur la figure 44, l'effet lié à la puissance non nulle du sonde est très important.

Nous pouvons enfin remarquer que dans une expérience réelle sur un jet atomique on ne détectera pas l'absorption sur le faisceau sonde, qui est très faible, mais plutôt la fluorescence à partir du niveau 2. La quantité intéressante à calculer dans ce cas est la population du niveau 2 (élément diagonal  $\rho_{22}$  de la matrice densité) ce qui ne changera rien à la discussion précédente en ce qui concerne la position et l'allure des résonances [82].

2° - Atomes en mouvement.

## a) Effet Doppler dans le système à trois niveaux.

Nous considérons une collection d'atomes à trois niveaux formant un gaz à la température  $T$  et soumis à l'action de deux ondes monochromatiques se propageant selon la même direction (dans le même sens ou en sens opposés). Comme nous l'avons expliqué au §.B.I.2° et moyennant les mêmes hypothèses, nous passerons du cas où les atomes sont au repos au cas du gaz d'atomes en faisant dans les équations les substitutions suivantes :

$$\alpha) \quad n_i \rightarrow n_i(v) \quad n_i(v) = \mathcal{N}_i (\sqrt{\pi} v_0)^{-1} e^{-\left(\frac{v}{v_0}\right)^2}$$

$$v_0 = (2RT/M)^{1/2} .$$

On tient aussi compte de la répartition des vitesses des atomes dans le niveau  $i$ , en l'absence de laser .

$$\beta) \quad \left. \begin{array}{l} \delta_1 \rightarrow \delta_1 - k_1 v \\ \delta_2 \rightarrow \delta_2 - k_2 v \end{array} \right\} \quad \begin{array}{l} \text{Ceci permet de tenir compte} \\ \text{de l'effet Doppler.} \end{array}$$

En effectuant cette dernière substitution dans l'équation (30) donnant la position des résonances (équation valable dans la limite où le champ sonde est très faible et le champ saturant très fort), on obtient une équation qui permet, pour  $\delta_1$  et  $\delta_2$  donnés, de déterminer les classes de vitesse participant à l'interaction de manière résonnante. L'équation (30) devient donc l'équation du second degré en  $v$  suivante :

$$(\delta_2 - k_2 v)^2 + \epsilon (\delta_1 - k_1 v)(\delta_2 - k_2 v) - w_1^2 = 0 \quad (31)$$

A  $\delta_1$  et  $\delta_2$  donnés, on trouve deux classes de vitesse en résonance si le discriminant de l'équation (31) est positif ; si ce discriminant est négatif il n'y a pas d'atomes excités de manière résonnante par les lasers. Une analyse détaillée de ce phénomène dans le cas  $\delta_1=0$  a été faite précédemment par Chebotayev [76].

Plutôt que de discuter à nouveau de cette manière l'existence de solutions pour l'équation en  $v$ , nous allons présenter une discussion graphique du problème qui permet de mieux illustrer l'effet du dédoublement de la résonance (équation (30)) quand les atomes ne sont plus immobiles.

b) Discussion graphique dans l'approximation du champ sonde faible.

Nous définissons tout d'abord deux fonctions  $Z_1(k_1, v)$  et  $Z_2(k_1, v)$  qui font intervenir respectivement les caractéristiques du laser 1 et de la transition  $0 \rightarrow 1$  et les caractéristiques correspondantes pour le laser 2 et la transition  $1 \rightarrow 2$  :

$$Z_1(k_1, v) = \frac{1}{2} [-(\delta_1 - k_1 v) \pm \sqrt{(\delta_1 - k_1 v)^2 + 4w_1^2}] \quad (32)$$

$$Z_2(k_1, v) = \epsilon (\delta_2 - k_2 v) = \epsilon \delta_2 + S k_1 v \quad : \quad S = -\epsilon \frac{k_2}{k_1} \quad (33)$$

Les classes de vitesse des atomes excités de manière résonnante sont données graphiquement par l'intersection des courbes représentatives de  $Y_1 = Z_1(X)$  et  $Y_2 = Z_2(X)$  (figure 45) ; ce sont les atomes ayant ces vitesses longitudinales qui apporteront la contribution principale au signal d'absorption du faisceau sonde.

Dans le cas  $\delta_1 = 0$ ,  $Y_1 = Z_1(X)$  est une hyperbole dont les asymptotes sont l'axe des  $X$  et la droite  $Y = X$  ; les deux branches de l'hyperbole sont alors séparées de  $2w_1$  sur l'axe des  $Y$  ( $v=0$ ). Un écart  $\delta_1 \neq 0$  pour le laser saturant par rapport à la résonance se traduit simplement par une translation le long de l'axe des  $X$  de l'hyperbole complète qui est alors centrée en  $X = \delta_1$  (figure 45).  $Y_2 = Z_2(X)$  est une droite de pente  $S$  qui coupe l'axe des  $Y$  au point  $\epsilon \delta_2$ . Comme nous l'avons expliqué au §.B.I.1°, quand on fait varier les fréquences des lasers à l'intérieur des largeurs Doppler, le module de  $S$  est pratiquement constant et égal à  $\omega_{21}/\omega_{10}$ . Le balayage de la fréquence du laser sonde se traduit alors graphiquement par une simple translation de la droite  $Y_2 = Z_2(X)$  parallèlement à l'axe des  $Y$ .

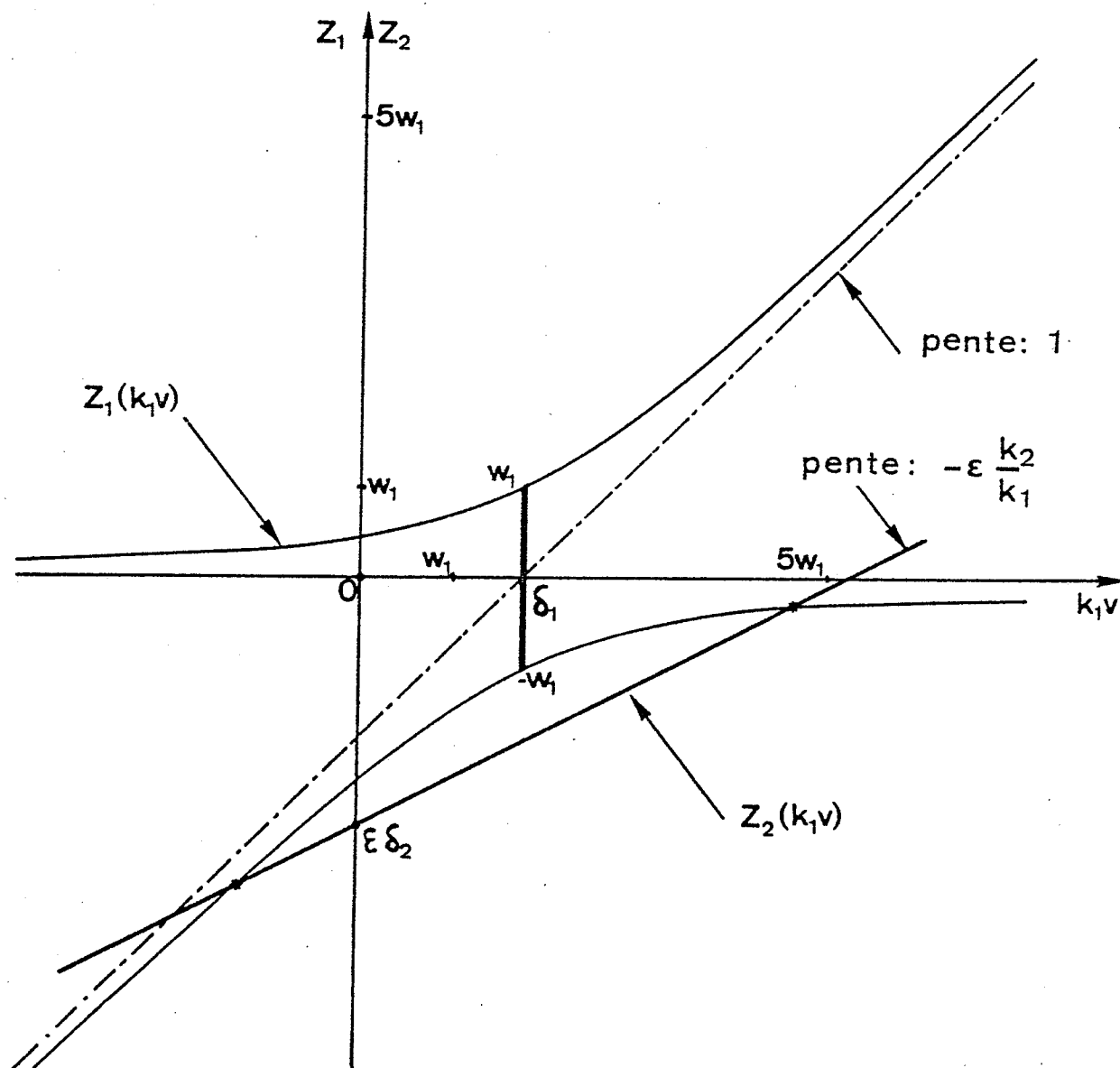


Figure 45 : Représentation graphique des fonctions  $Z_1(k_1v)$  et  $Z_2(k_1v)$  utilisées dans la discussion graphique de l'effet Autler-Townes en présence de l'effet Doppler.

Les deux courbes représentatives de  $Y_1$  et  $Y_2$  se coupent en général en deux points qui correspondent aux deux classes de vitesse en résonance. En déplaçant la droite de pente  $S$  parallèlement à elle-même, on voit immédiatement (figure 45) que, pour certaines valeurs de  $\delta_2$ , il peut ne pas y avoir de classe de vitesse concernée, c'est-à-dire ne pas y avoir d'absorption du faisceau sonde (dans la mesure où l'interaction résonnante est prédominante).

Par conséquent, l'effet Autler-Townes (responsable du dédoublement du niveau 1 et, par suite, de l'existence des deux branches de  $Z_1$ ) se manifeste dans les systèmes à trois niveaux avec élargissement Doppler comme un "trou" dans la courbe d'absorption, c'est-à-dire comme un domaine de fréquence du laser sonde (situé dans la courbe d'absorption Doppler) dans lequel l'interaction résonnante n'est possible avec aucun des atomes. Ce phénomène, qui fait apparaître une structure de doublet correspondant aux deux bords du trou (figure 51), est très différent du dédoublement observé avec des atomes au repos.

Pour que ce trou dans la courbe d'absorption existe, il faut évidemment que la pente de la droite  $Z_2$  soit comprise entre celles des deux asymptotes, ce qui s'écrit :  $0 < S < 1$ . (34)

Les conditions d'observation de l'effet Autler-Townes dans un système à trois niveaux avec élargissement Doppler sont donc les suivantes (\*) :

- i)  $\omega_{21} < \omega_{10}$  ; la fréquence du faisceau sonde doit être plus petite que celle du faisceau saturant ;
- ii) pour un système à trois niveaux en cascade ( $\epsilon = +1$ ) , les deux faisceaux laser doivent se propager en sens opposés ( $k_2/k_1 < 0$ ) .
- iii) pour un système à trois niveaux en V ou en V renversé ( $\epsilon = -1$ ) , les deux faisceaux laser doivent se propager dans la même direction ( $k_2/k_1 > 0$ ) .

Les bords du trou sont déterminés par les tangentes de pente  $S$  à l'hyperbole (figures 48 et 49) et la largeur en fréquence de ce trou dépend de  $S$  , c'est-à-dire du rapport  $\omega_{21}/\omega_{10}$  .

---

(\*) Compte tenu du fait que l'on doit additionner les contributions de toutes les classes de vitesse au signal de résonance et tenir compte des différentes largeurs homogènes, les conclusions concernant les conditions d'observation de l'effet devraient être légèrement assouplies. Un calcul numérique (cf. §.C.I.2°-e) sur un cas fictif nous a montré que, bien qu'il n'y ait pas de discontinuité dans l'observation de l'effet pour  $S=1$  , la possibilité d'observer un doublet disparaît dès que  $(S-1)$  est supérieur à quelques  $10^{-2}$  .

On obtient pour cette largeur :

$$\Delta\delta_2 = 2\rho w_1 \quad (35)$$

avec  $\rho = 2\sqrt{S(1-S)}$  (36)

$\rho$  est compris entre 0 et 1 ( $0 < \rho < 1$ ) de sorte que l'écart du "doublet" que l'on obtient est inférieur (ou égal pour  $S=1/2$ ) à l'écart  $2w_1$  du doublet Autler-Townes pour les atomes au repos à la résonance exacte ( $\delta_1=0$ ). La courbe représentant les variations de  $\rho$  avec le paramètre  $S$  est la demi-ellipse tracée sur la figure 46.

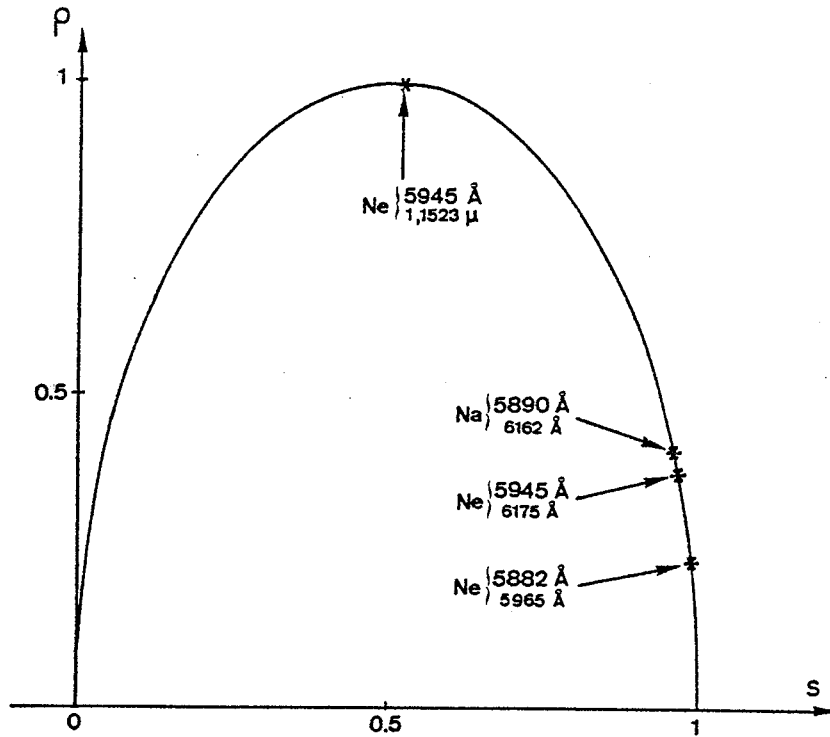


Figure 46 : Variation de  $\rho$  avec le paramètre  $S = -\varepsilon k_2/k_1$ . La largeur du trou Autler-Townes est  $2\rho w_1$ .

Comme nous l'avons indiqué auparavant un désaccord du laser saturant par rapport à la résonance ( $\delta_1 \neq 0$ ) se traduit par une translation  $k_1 v = \delta_1$  de l'hyperbole le long de l'axe des  $X$ . Cette transformation géométrique a les conséquences suivantes pour la discussion que nous venons de faire :

i) les fréquences de résonance pour les atomes au repos ( $k_1 v = 0$ ) sont données par les deux intersections de l'hyperbole avec l'axe des  $Y$  (figure 45). On retrouve bien ici le comportement très différent des



deux résonances pour  $\delta_1 \neq 0$ , tel qu'il a été illustré précédemment sur les figures 42, 43 et 44 ;

ii) dans la limite des champs saturants faibles, l'hyperbole se réduit à ses asymptotes et les deux bords du trou se rejoignent pour donner une seule résonance dont la position est telle que  $\varepsilon \delta_2 + S \delta_1 = 0$  ou encore  $\delta_2 = (k_2/k_1)\delta_1$ , ce qui est le résultat habituel pour la résonance du système à trois niveaux ;

iii) la largeur en fréquence  $\Delta\delta_2$  du trou est indépendante de  $\delta_1$  et les fréquences correspondant aux bords du trou sont :

$$\delta_2^{\pm} = (k_2/k_1)\delta_1 \pm \rho w_1 \quad . \quad (37)$$

Ces fréquences correspondent approximativement, après intégration sur les vitesses, aux résonances dans la courbe d'absorption (voir §.C.I.2°-e et [82]). Rappelons que dans le cas des atomes immobiles l'écart du doublet Autler-Townes est (équation (30)) :  $\Delta\delta_2 = \sqrt{\delta_1^2 + 4w_1^2}$  et augmente donc rapidement avec  $\delta_1$  ;

iv) les bords du trou étant définis par les tangentes (de pente S) à l'hyperbole, les points de contact donnent les classes de vitesse correspondantes, soit :

$$k_1 v^{\pm} = \delta_1 \pm \varepsilon \frac{2S-1}{\sqrt{S(1-S)}} w_1 \quad . \quad (38)$$

Les intensités relatives des deux "résonances" (bords du trou) dépendent des populations respectives des classes de vitesse  $v^+$  et  $v^-$  et donc de la position de  $v^+$  et  $v^-$  dans la distribution Doppler des vitesses longitudinales. Nous pourrions discuter qualitativement l'évolution du doublet Autler-Townes quant  $|\delta_1|$  augmente en utilisant cet argument (voir §.C.I.2°-d et en particulier la figure 50) ;

v) en maintenant fixe la fréquence du laser sonde et en faisant varier la fréquence du laser saturant, on pourra également observer le trou dans la courbe d'absorption. Sur le graphique de la figure 44, on remplace seulement la translation de la droite de pente S parallèlement à l'axe Y, par une translation de l'hyperbole le long de l'axe

des Y . On observera, dans les mêmes conditions que précédemment ( $0 < S < 1$ ) , un trou dans la courbe d'absorption ; la largeur du trou

est dans ce cas :  $\Delta\delta_1 = \frac{\omega_{10}}{\omega_{21}} \Delta\delta_2$  .

Dans un système à trois niveaux avec élargissement Doppler, on peut donc observer également l'effet Autler-Townes en balayant la fréquence du laser saturant ( $\delta_2$  fixe,  $\delta_1$  variable) ce qui n'est pas le cas dans un jet atomique [82].

Avant d'appliquer notre discussion graphique à quelques cas particuliers du néon, nous allons maintenant montrer que notre représentation graphique n'est rien d'autre qu'un diagramme d'énergie d'atome habillé [111] dans lequel on tient compte de l'effet Doppler [126, 127].

c) Diagramme d'énergie de l'atome habillé et effet Doppler.

Le diagramme d'énergie de l'atome habillé par les photons du laser saturant est représenté sur la figure 47 en fonction de la fréquence  $\omega$  de ce laser. Le système à trois niveaux considéré est disposé en cascade mais la transformation du diagramme d'énergie pour traiter un autre cas est très simple à réaliser.

L'état de l'atome habillé  $|0,n\rangle$  (niveau atomique  $0+n$  photons) est pris comme origine des énergies ; les états  $|1,n\rangle$  et  $|2,n\rangle$  sont donc représentés par des droites horizontales comme dans le diagramme d'énergie de l'atome. L'état  $|0,n+1\rangle$  , qui contient 1 photon de fréquence  $\Omega_1$  de plus que l'état  $|0,n\rangle$  , est représenté par une droite de pente 1 qui coupe la droite horizontale représentant l'état  $|1,n\rangle$  en  $\Omega_1 = \omega_{10}$  .

Quand on tient compte du couplage entre l'atome et le champ saturant, on obtient pour les niveaux de l'atome habillé, autour du point de croisement de  $|1,n\rangle$  et  $|0,n+1\rangle$  , une hyperbole dont les asymptotes représentent les niveaux non perturbés.

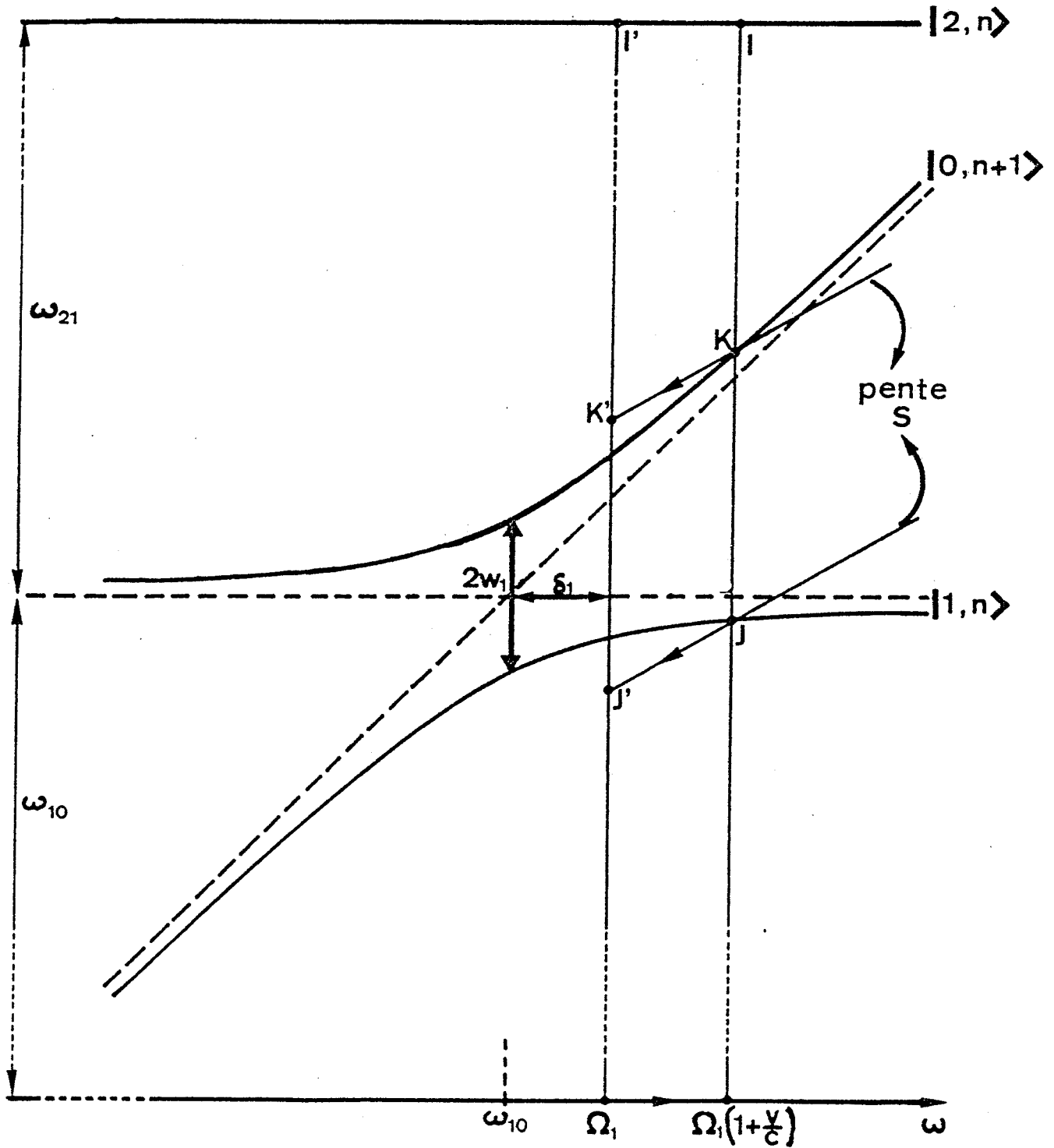
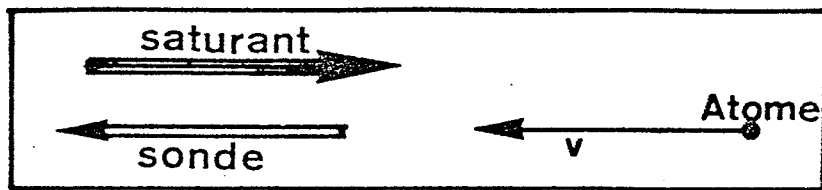
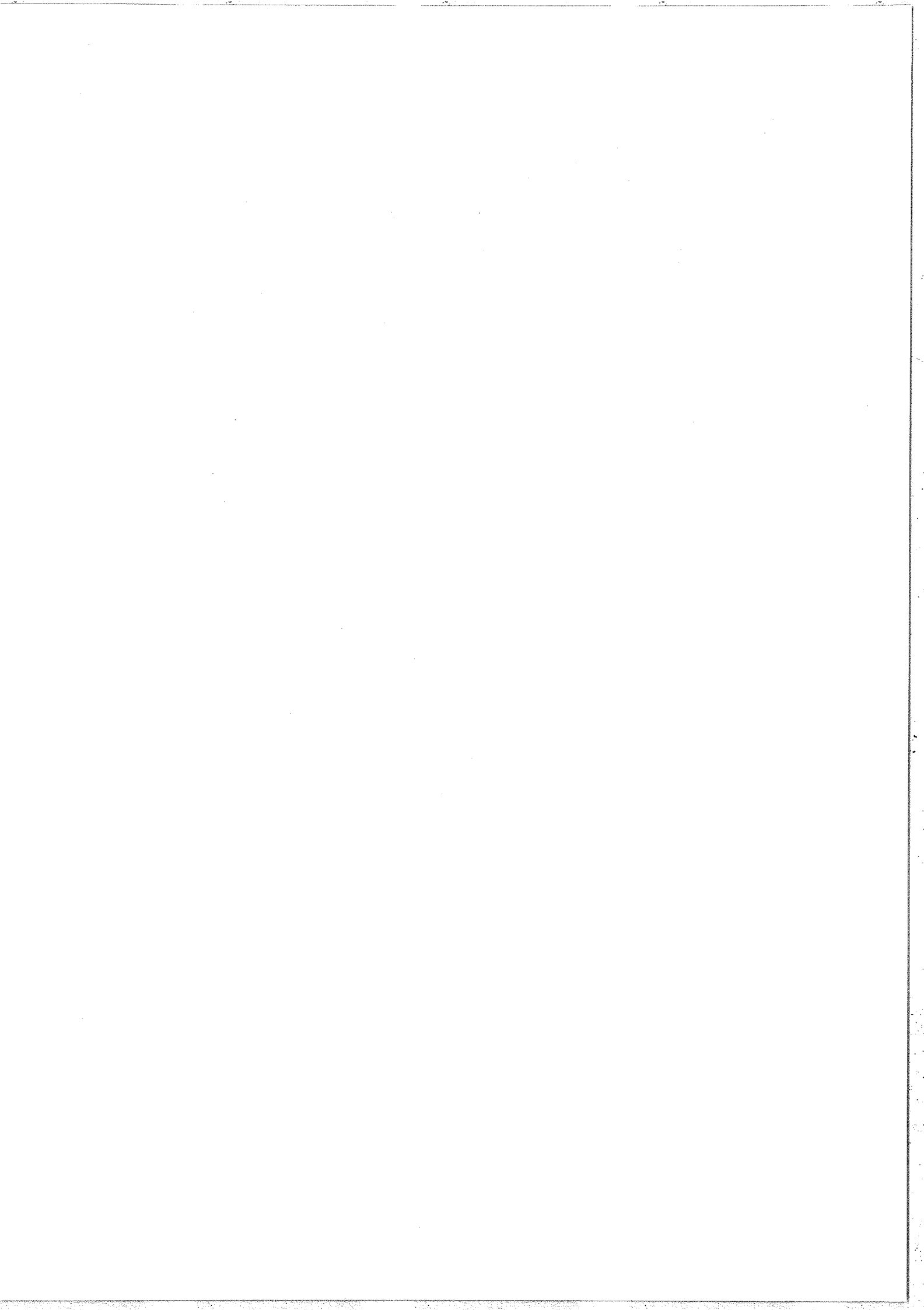


Figure 47 : Diagramme d'énergie de l'atome habillé en présence d'effet Doppler.



Si l'atome se déplace à la vitesse  $v$  dans le sens opposé au sens de propagation du faisceau laser, il voit dans son référentiel propre une onde saturante de fréquence  $\Omega_1(1 + \frac{v}{c})$ . Les fréquences de résonance pour le laser sonde dans le référentiel de l'atome sont, dans ce cas, représentées par les longueurs des segments IJ et IK de la figure 47. Si nous revenons maintenant dans le référentiel du laboratoire, il faut modifier IJ et IK pour tenir compte de l'effet Doppler correspondant et par conséquent leur ajouter  $\omega_{21} \frac{v}{c}$  ( $k_1/k_2$  est négatif dans le cas particulier de la figure 47 et IJ et IK sont toujours très proches de  $\omega_{21}$ ). Les fréquences de résonance obtenues pour le faisceau sonde sont donc I'J' et I'K', J' et K' étant les points d'intersection de la droite verticale  $\omega = \Omega_1$  avec les droites de pente  $S = \frac{\omega_{21}}{\omega_{10}}$  provenant respectivement des points J et K.

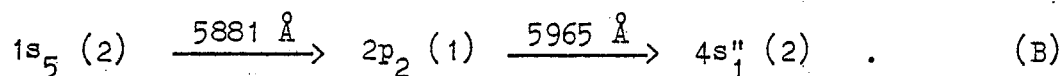
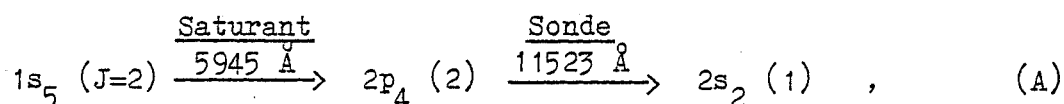
Pour chaque classe de vitesse longitudinale on peut donc, en utilisant cette construction géométrique récemment décrite et utilisée par C. Cohen-Tannoudji et S. Reynaud [126, 127], trouver les fréquences de résonance pour le faisceau sonde. Le point de vue est en quelque sorte réciproque de celui qui existe dans la représentation graphique du paragraphe précédent où on recherche, pour des fréquences  $\Omega_1$  et  $\Omega_2$  données des lasers, quelles sont les classes de vitesse en résonance. Les deux diagrammes n'en sont pas moins équivalents comme on peut s'en convaincre aisément en comparant les figures 45 et 47 ; l'illustration graphique que nous avons proposée au paragraphe précédent n'est donc rien d'autre qu'une représentation des niveaux de l'atome habillé qui permet de tenir compte de l'effet Doppler.

#### d) Cas particuliers dans le néon : discussion graphique.

Le choix des systèmes particuliers que nous allons maintenant étudier a été en fait imposé par des considérations expérimentales et pratiques (voir §.C.II.). Toutefois, au vu de la discussion précédente, il est clair qu'il sera intéressant de considérer des systèmes correspondant à des valeurs du paramètre  $S$  (et donc aussi de  $\rho$ ) très

différentes. Les formules (36) et (38) montrent immédiatement que le cas où  $S$  est voisin de  $1/2$  et celui où  $S$  est voisin de  $1$  (tout en restant plus petit que  $1$ ) seront intéressants à étudier. Le cas où  $S$  est voisin de zéro (et positif) est lui aussi intéressant, mais dans ce cas là le modèle théorique utilisé, qui met l'accent sur l'effet Doppler des deux transitions, n'est pas bien adapté.

Nous allons donc discuter les deux systèmes à trois niveaux en cascade suivants de Ne I :



Pour ces deux systèmes, dans les conditions expérimentales habituelles, l'absorption sur le faisceau sonde en l'absence du laser saturant est très faible ( $\mathcal{N}_2 - \mathcal{N}_1 \approx 0$ ) et la forme des raies obtenues à basse puissance est relativement simple (figures 34 et 40).

Les deux cas choisis satisfont à la condition  $\omega_{21} < \omega_{10}$ . On a pour le système (A) :  $S_A = 0,516$  et  $\rho_A = 0,9995$  et pour le système (B) :  $S_B = 0,986$  et  $\rho_B = 0,235$ . Comme il s'agit de cascades, il convient de considérer le cas où les lasers se propagent en sens opposés ( $k_2/k_1 < 0$ ).

La figure 48 illustre le cas (A) ; le rapport des fréquences est dans ce cas très voisin de  $0,5$  de sorte que le "doublet" Autler-Townes (en fait les 2 bords du trou) a pratiquement la même séparation  $2w_1$  que dans le cas d'une expérience en jet atomique avec  $\delta_1 = 0$ . De plus les positions des points de contact sur chacune des deux branches de l'hyperbole correspondent pratiquement à la même vitesse  $v^\pm \approx \delta_1/k_1$ . En conséquence, les deux composantes du doublet (les deux bords du trou) devraient avoir sensiblement la même intensité même pour  $\delta_1 \neq 0$ .

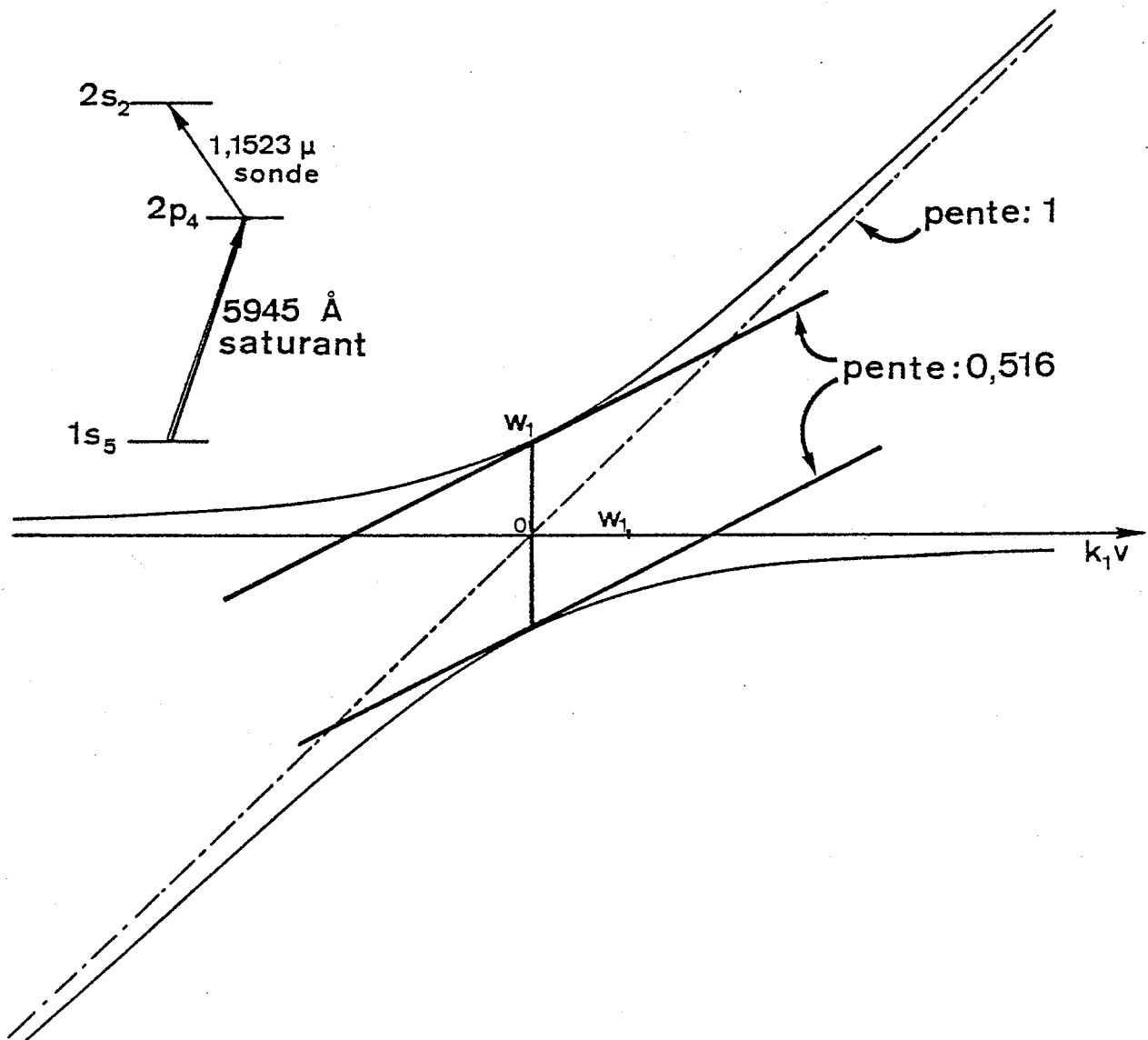


Figure 48 : Illustration graphique de l'effet Autler-Townes pour le système à trois niveaux (A).

Les caractéristiques correspondantes pour le système à trois niveaux (B) sont représentées sur les figures 49 et 50. Le "dédoublément" Autler-Townes est réduit à  $0,47 w_1$  du fait du rapport des fréquences très proche de 1. La position des points de contact des tangentes de pente  $S$  est indiquée sur la figure 50 pour  $\delta_1=0$  ; les vitesses concernées  $v^{\pm} = \pm 8,27 w_1/k_1$  peuvent être très grandes. Le profil Doppler est également tracé sur la figure 50 ; dans le cas particulier

$w_1/2\pi = 130$  MHz (valeur correspondant aux expériences §.C.II.), on trouve  $|v^\pm| = 630$  m/s, valeur qui est supérieure au module de la vitesse le plus probable  $v_0 \approx 500$  m/s.

L'écart  $(v^+ - v^-)$  est indépendant de  $\delta_1$ , de sorte qu'un désaccord de fréquence non nul pour le saturant produit dans le cas (B) des modifications importantes du doublet Autler-Townes (figure 50) :

i) les populations étant différentes pour les deux classes de vitesse  $v^+$  et  $v^-$ , le doublet devient dissymétrique même pour les faibles valeurs de  $\delta_1$  ;

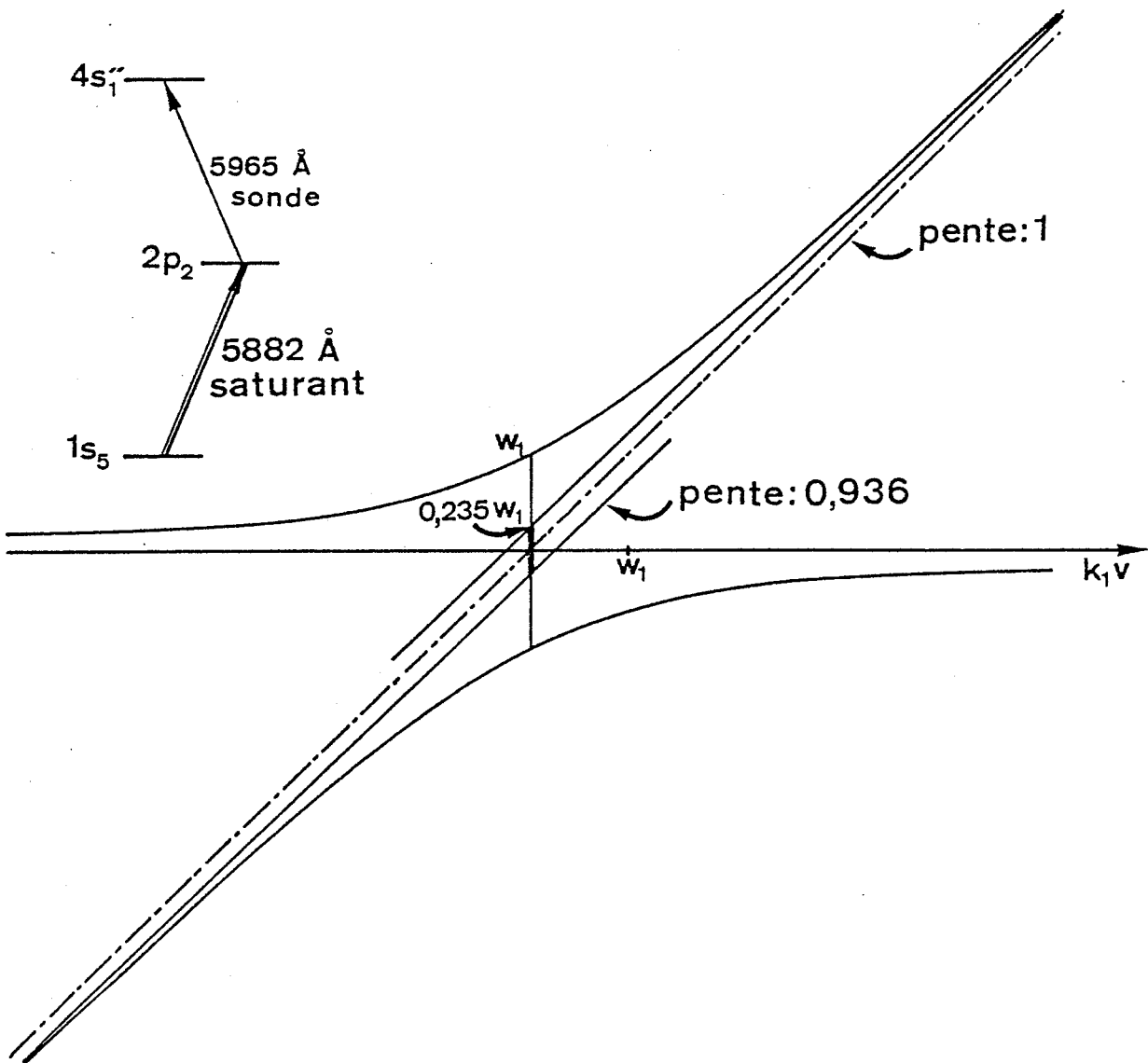


Figure 49 : Illustration graphique de l'effet Autler-Townes pour le système à trois niveaux (B).



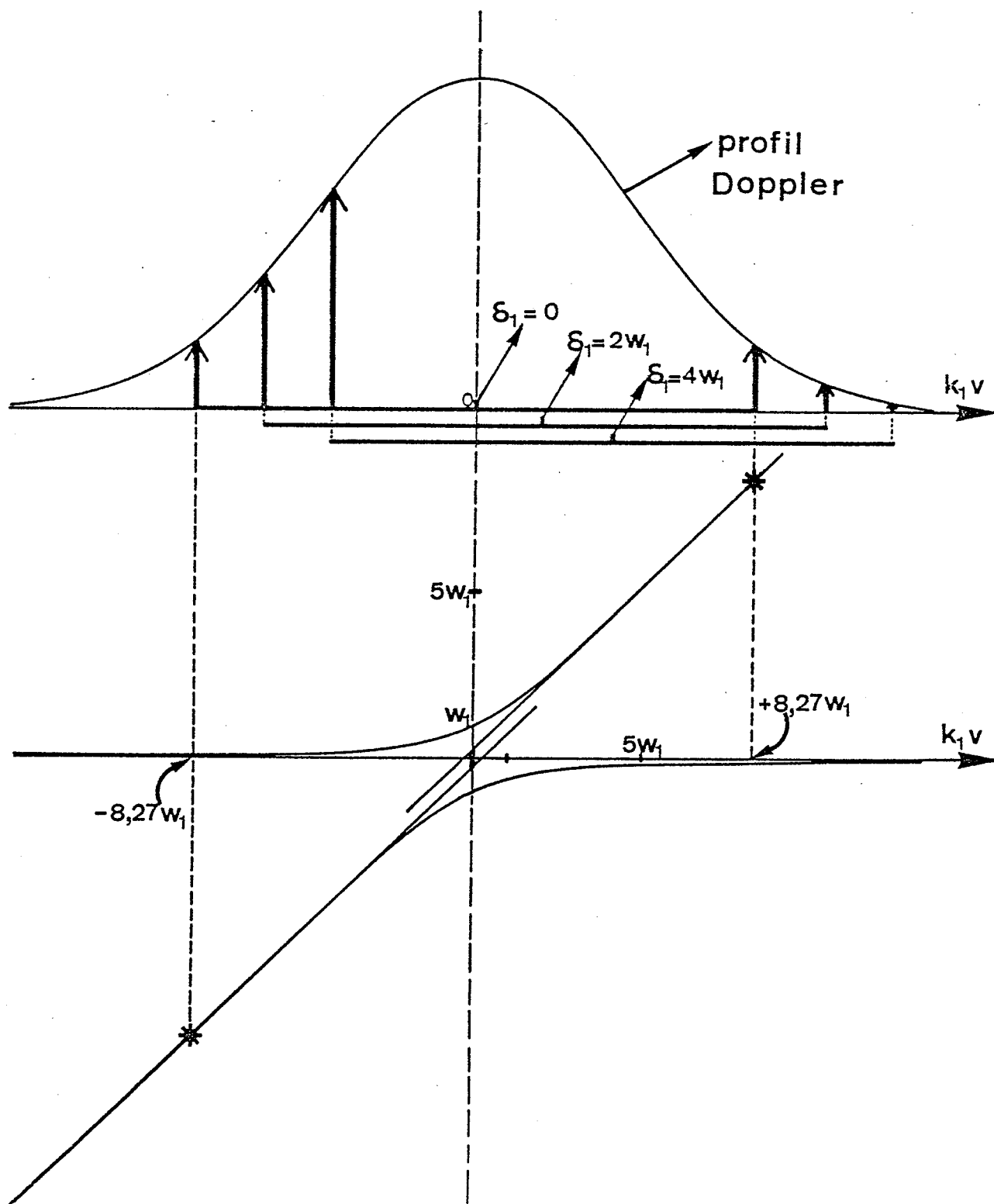
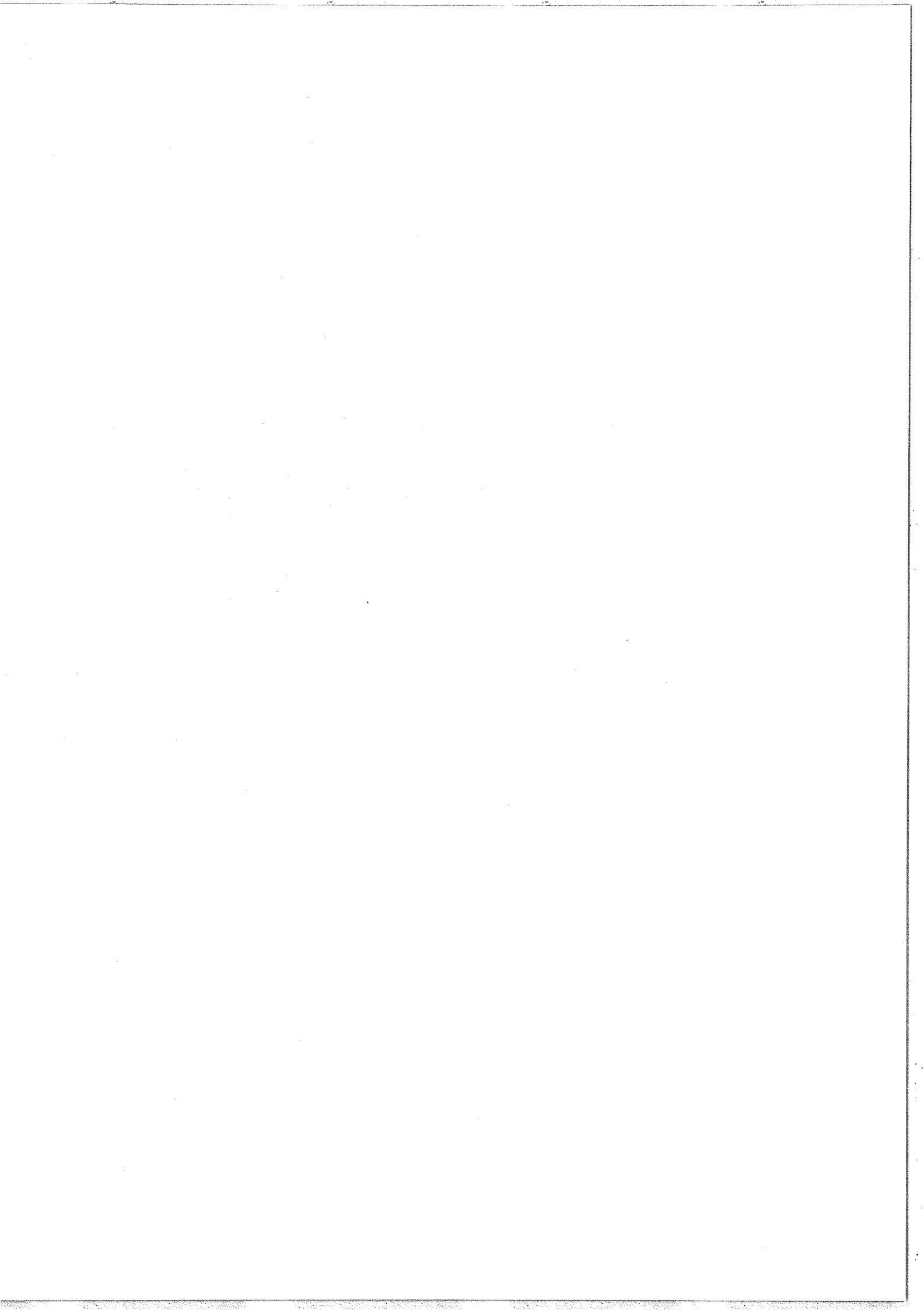


Figure 50 : Illustration graphique de l'évolution du "doublet" Autler-Townes avec  $\delta_1$  (système à trois niveaux (B)).



- ii) pour  $\delta_1 > 0$ , l'intensité de la composante "bleue" du doublet (qui correspond à  $\delta_2^+$ ) décroît rapidement avec  $\delta_1$  et cette composante disparaît pratiquement pour  $\delta_1 \approx 6w_1$  ;
- iii) pour  $\delta_1 > 0$ , l'intensité de la composante "rouge" du doublet augmente d'abord avec  $\delta_1$ , passe par un maximum pour  $\delta_1 \approx 8w_1$  et décroît lentement ensuite pour des valeurs plus grandes de  $\delta_1$  ;
- iv) pour  $\delta_1 < 0$ , les comportements des composantes "bleue" et "rouge" quand  $|\delta_1|$  augmente sont simplement échangés.

Ce comportement très différent des systèmes (A) et (B), ainsi que l'ensemble de notre discussion graphique, sont entièrement confirmés par les calculs numériques que nous avons réalisés et que nous présentons maintenant.

e) Cas particuliers dans le néon : calculs numériques.

L'intégration sur les vitesses qui permet d'obtenir le coefficient d'absorption  $\alpha_2$  (équations (12), (17) et (18)) est possible par une méthode de résidus dans la limite des grandes largeurs Doppler ; de tels calculs ont été précédemment effectués dans le cas d'un champ sonde très faible [71, 85]. Dans le cas général, il est nécessaire de calculer numériquement  $\alpha_2$  sur ordinateur pour des valeurs données des paramètres (notamment de  $\delta_1$ ) ; ce type de calcul permet de tenir compte de la valeur finie de la largeur Doppler, ce qui peut avoir une très grande importance si on se souvient des valeurs élevées des vitesses concernées dans certains cas (voir §. précédent).

Le calcul numérique de  $\alpha_2$  (équation (17)) a été effectué sur l'ordinateur UNIVAC 1110 du centre de calcul de l'Université Paris-Sud dans les conditions suivantes :

- i) la différence de population ( $\mathcal{N}_2 - \mathcal{N}_1$ ) est supposée nulle. Ceci correspond à une situation où il n'y a pas d'absorption en absence de champ saturant. Cette hypothèse est tout à fait réaliste dans nos conditions expérimentales ;

ii) l'intégration numérique sur la distribution de vitesse est effectuée en utilisant une méthode de Simpson avec prédiction du pas d'intégration [128] ;

iii) les valeurs de  $\Gamma_i$  (à pression nulle) et  $\gamma_{ij}$  utilisés sont celles publiées dans les références [98, 99, 129-131] et nous avons donné aux constantes de relaxation des cohérences optiques  $\Gamma_{ij}$  les valeurs  $\frac{\Gamma_i + \Gamma_j}{2}$ .

Les courbes de résonance ont été calculées, d'une part en utilisant la solution exacte du système d'équations (11) et, d'autre part, en utilisant l'approximation du premier ordre par rapport au champ sonde (équation (14)). Les deux profils obtenus dans le cas (B) sont comparés sur la figure 51. Le trou caractéristique de l'effet Autler-Townes dans les gaz est parfaitement visible sur la courbe correspondant à l'approximation du premier ordre. Le même dédoublement est obtenu sur la courbe correspondant au calcul exact, mais on observe dans ce cas une diminution

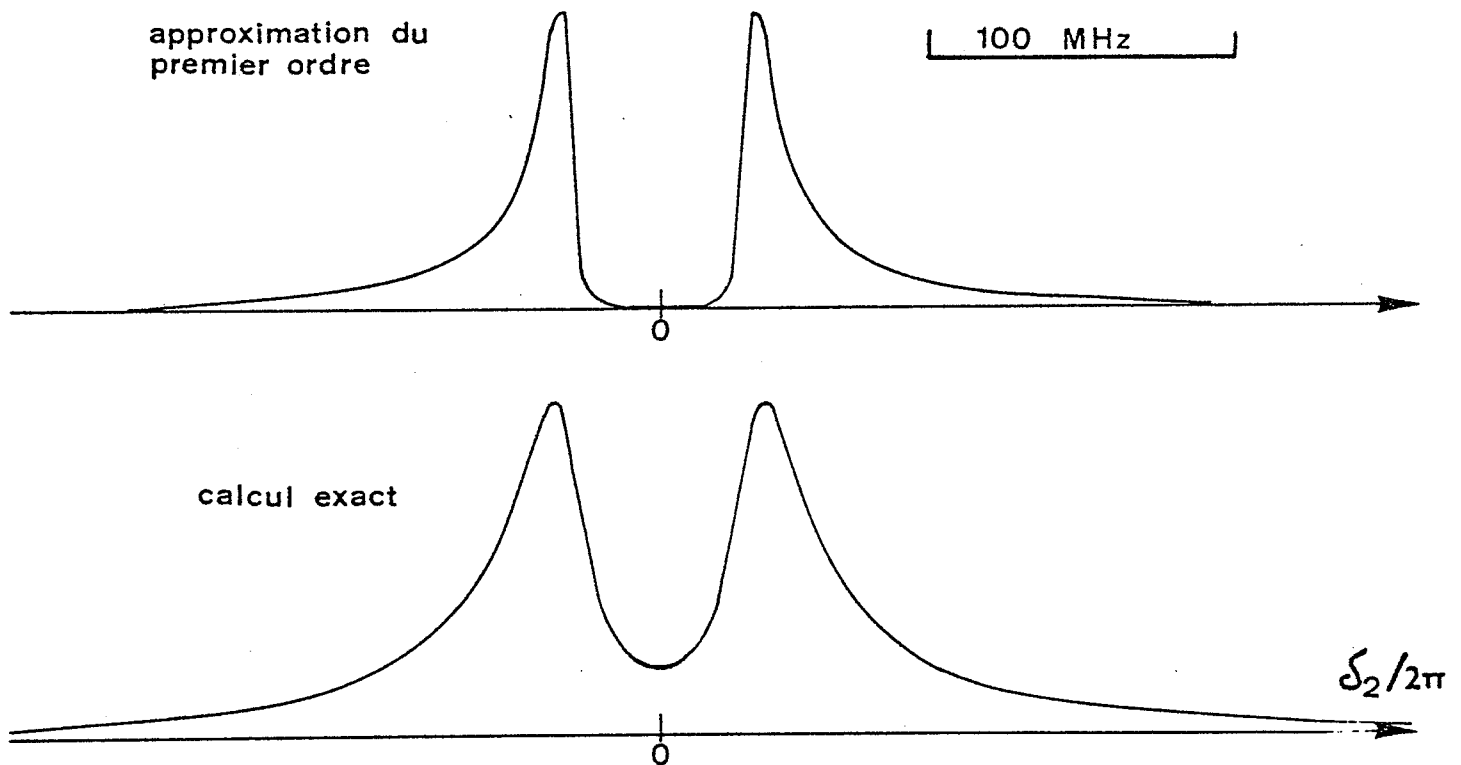


Figure 51 : Courbes de résonance pour le système à trois niveaux (B) : comparaison de l'approximation du premier ordre et du calcul exact ( $w_1/2\pi = 130$  MHz,  $w_2/w_1 = 0,1$ ). L'échelle verticale pour la courbe du haut a été réduite d'un facteur 11.

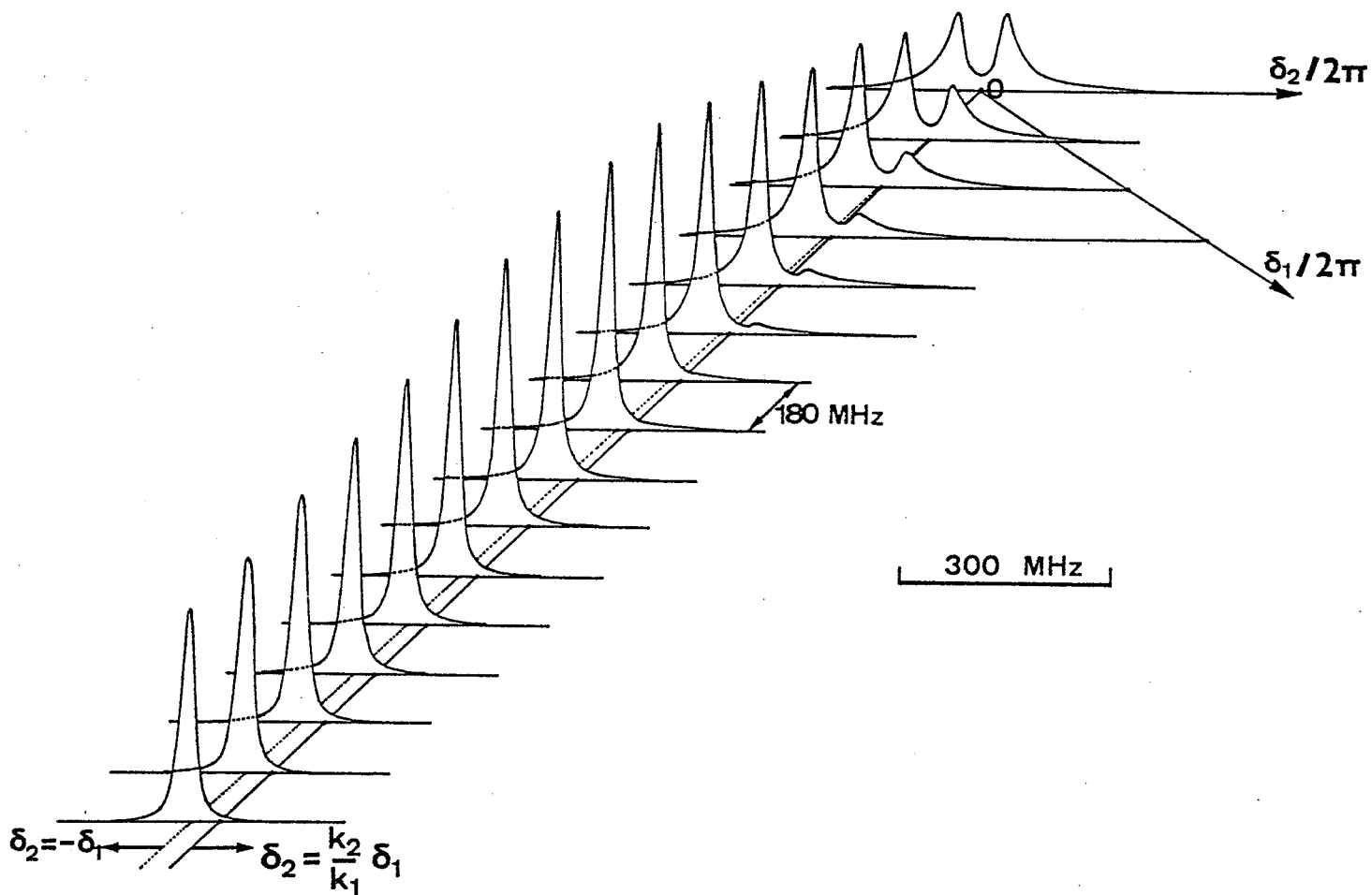
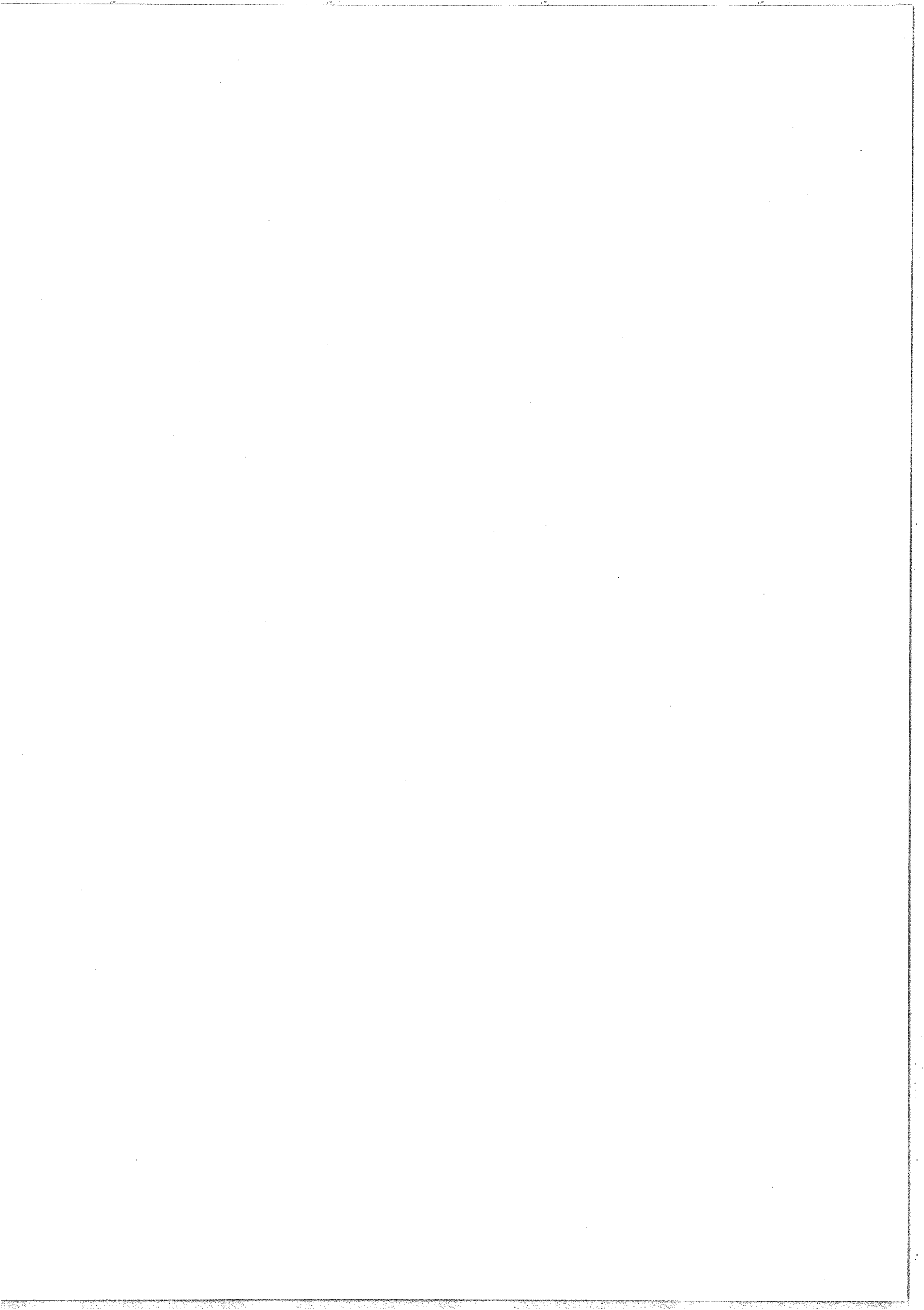


Figure 52 : Courbes de résonance calculées pour le système à trois niveaux (B) : évolution du profil et des intensités avec  $\delta_1$  ( $w_1/2\pi = 130$  MHz ,  $w_2/w_1 = 0,1$ ).



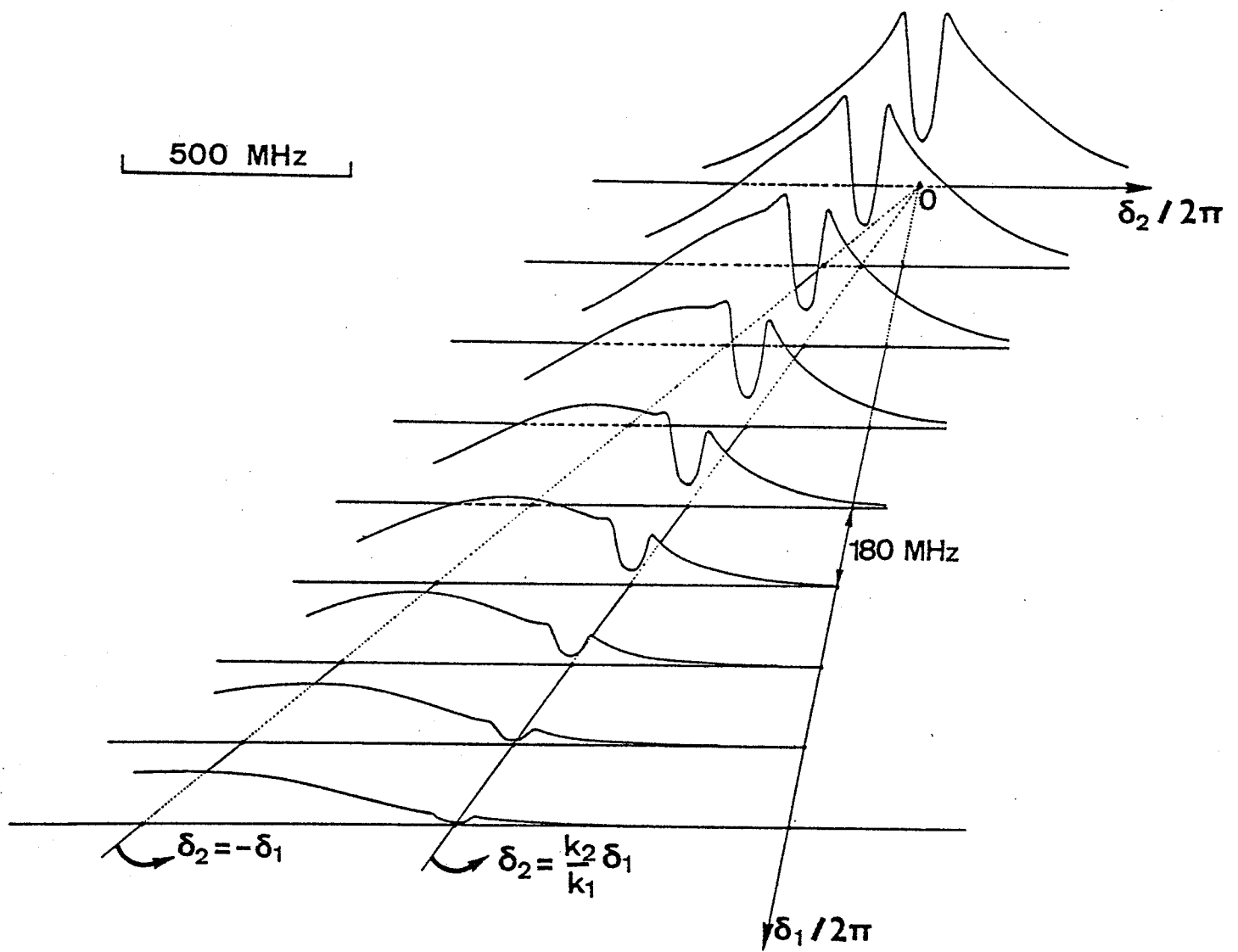
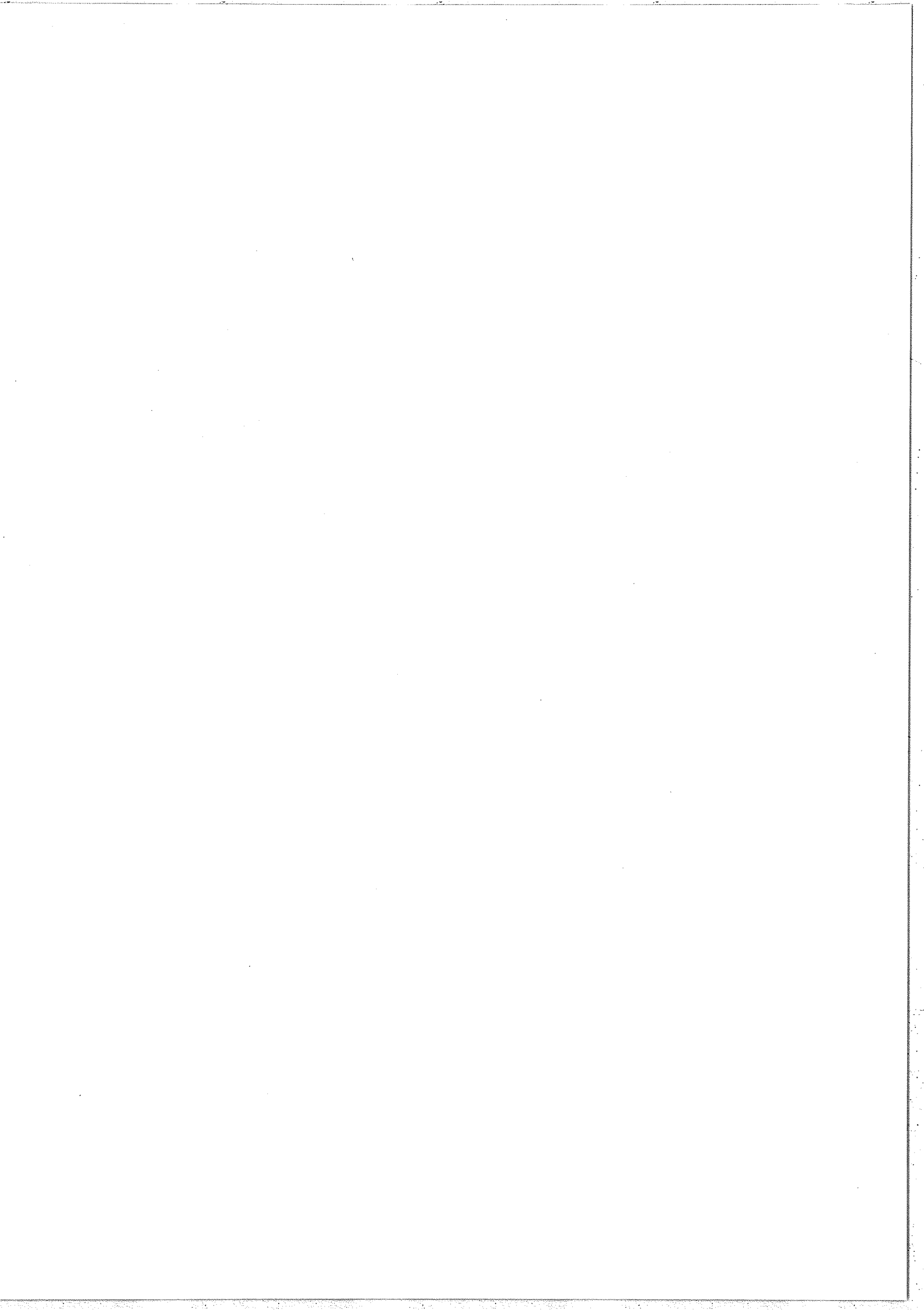


Figure 53 : Courbes de résonance calculées pour le système à trois niveaux (A) : évolution du profil et des intensités avec  $\delta_1$  ( $\omega_1/2\pi = 80$  MHz ,  $\omega_2/\omega_1 = 0,1$ ).





très importante du contraste même pour  $\left(\frac{\omega_2}{\omega_1}\right) = \frac{1}{10}$  ce qui correspond pratiquement pour ce système à un rapport des densités d'énergie des lasers  $\frac{P_2}{P_1} \approx 1/100$ . De plus, l'amplitude des maxima de la courbe (coefficient d'absorption) correspondant à la solution exacte est considérablement réduite (par un facteur 11 environ). La comparaison des deux courbes de la figure 51 montre clairement que l'approximation du premier ordre relative au faisceau sonde peut être insuffisante dans beaucoup de conditions expérimentales réelles. Pour de trop fortes puissances du laser sonde, le trou peut même disparaître complètement [119] ; dans nos expériences avec deux lasers à colorants, nous avons dû réduire la densité d'énergie du laser sonde à moins de 1% de celle du laser saturant pour pouvoir observer le "doublet" Autler-Townes.

Toutes les caractéristiques des résonances déduites de la discussion graphique sont confirmées par les courbes calculées (solution exacte des équations) de la figure 52. Par exemple, l'écart du doublet est voisin de 60 MHz avec  $2\omega_1 = 260$  MHz et le doublet se comporte comme nous l'avons prévu quand  $|\delta_1|$  augmente. Notre calcul montre que, quand  $|\delta_1|$  augmente, la résonance à deux photons située à  $\delta_2 = -\delta_1$  se substitue peu à peu à la composante Autler-Townes intense située à  $\delta_2 = -\frac{\omega_{21}}{\omega_{10}} \delta_1 - \rho\omega_1$  (pour  $\delta_1 > 0$ ). La résonance à deux photons correspond à la transition directe  $0 \rightarrow 2$  induite par deux ondes monochromatiques de fréquences légèrement différentes et se propageant en sens inverses ; la probabilité de transition correspondante est fortement augmentée par la présence du niveau intermédiaire 1 [69, 70]. L'effet Doppler résiduel pour cette transition à deux photons, qui est l'effet Doppler de la transition  $0 \rightarrow 1$  multiplié par le facteur  $(1-S)$  (équation (9)), est très petit pour le système (B) ( $(1-S) = 0,014$ ).

La figure 53 montre que le même phénomène se produit pour le système (A). Dans ce cas l'écart de fréquence entre la résonance à deux photons et le trou Autler-Townes croît beaucoup plus vite avec  $\delta_1$  de

sorte que les deux résonances coexistent dans un certain domaine de valeurs de  $\delta_1$ . La largeur associée à la transition à deux photons est, dans le système (A), à peu près la moitié de la largeur Doppler de la transition  $0 \rightarrow 1$  et est donc beaucoup plus grande que la largeur du trou Autler-Townes. Les résultats de la discussion graphique du système (A) peuvent être comparés aux résultats du calcul (résolution des équations sans faire l'approximation du champ sonde faible) présentés sur la figure 53. L'écart du doublet est pratiquement 80 MHz avec  $2\omega_1 = 80$  MHz et les deux composantes du doublet ont des intensités comparables même pour  $\delta_1 \neq 0$ . La grande largeur des résonances et le faible contraste pour le trou sont principalement dus à la durée de vie très courte du niveau 2 (niveau  $2s_2$ ,  $\tau \approx 8$  ns).

Nous avons également calculé les courbes obtenues pour une fréquence fixe du laser sonde et en faisant varier la fréquence du laser saturant pour les cas (A) et (B). Comme prévu dans l'étude graphique les courbes sont semblables à celles des figures 51, 52 et 53 mais on doit multiplier l'échelle de fréquence par un facteur  $\frac{\omega_{10}}{\omega_{21}}$ .

Sur la figure 54 sont représentées les courbes de résonances obtenues pour un autre système à trois niveaux du néon où l'on a :  $N_0 - N_1 = 0$ , c'est-à-dire où, en l'absence du laser sonde, il n'y a pas d'absorption sur le faisceau saturant. Pour ce système à trois niveaux, la courbe de résonance à faible puissance du saturant est analogue à celles représentées sur la figure 29d. Sur la figure 54 l'effet Autler-Townes apparaît clairement comme un trou dans la courbe d'absorption du faisceau sonde, principalement sur la courbe montrant la superposition de l'absorption normale (courbe Doppler) et de la modification de cette absorption induite par le faisceau saturant (figure 54c).

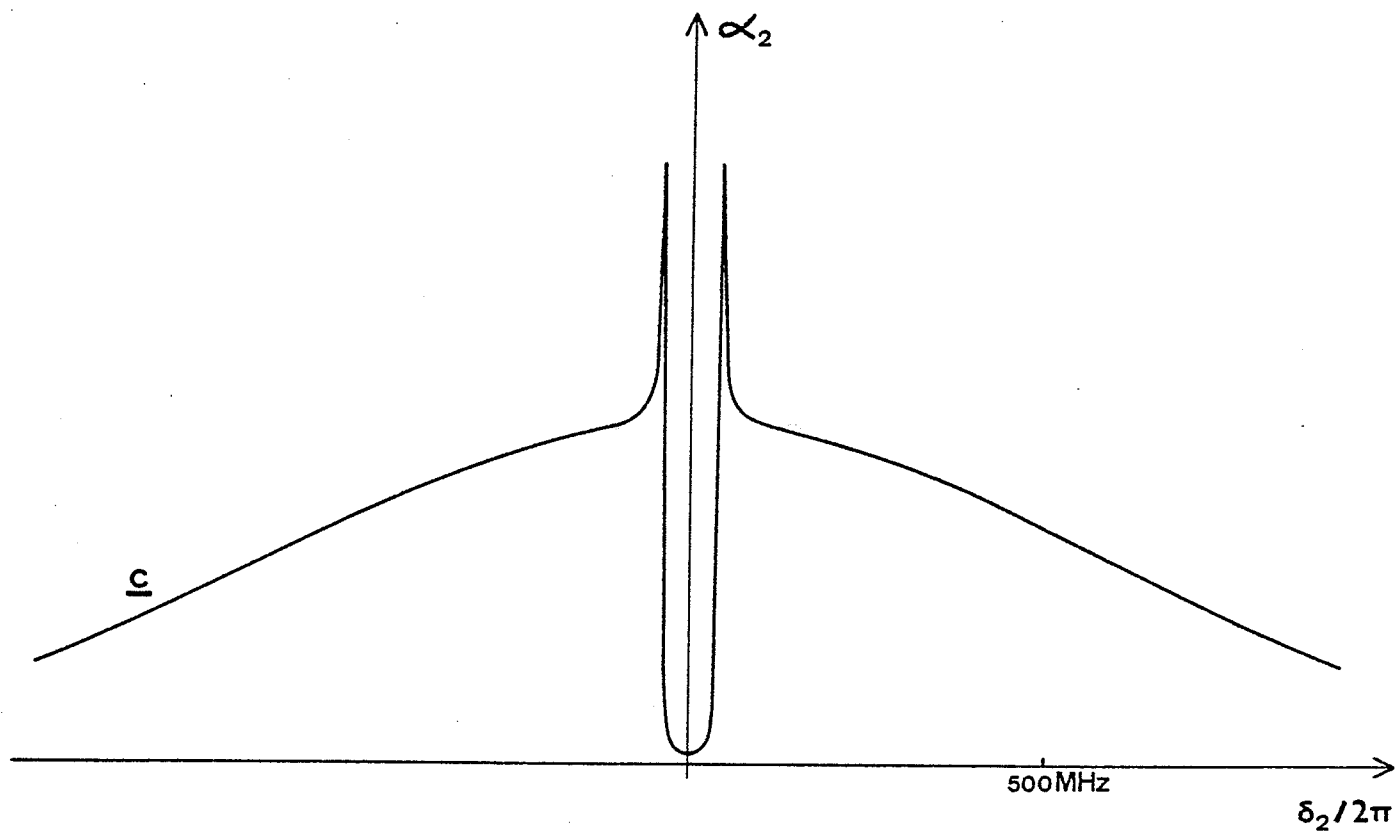
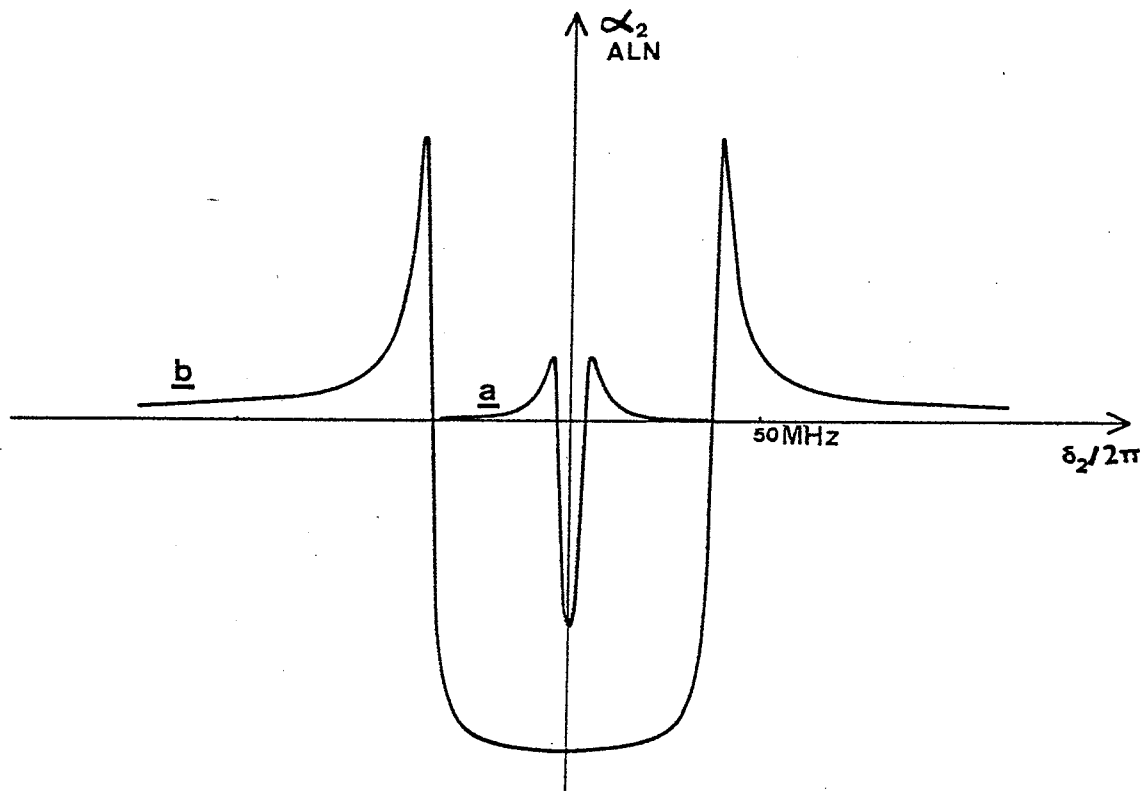
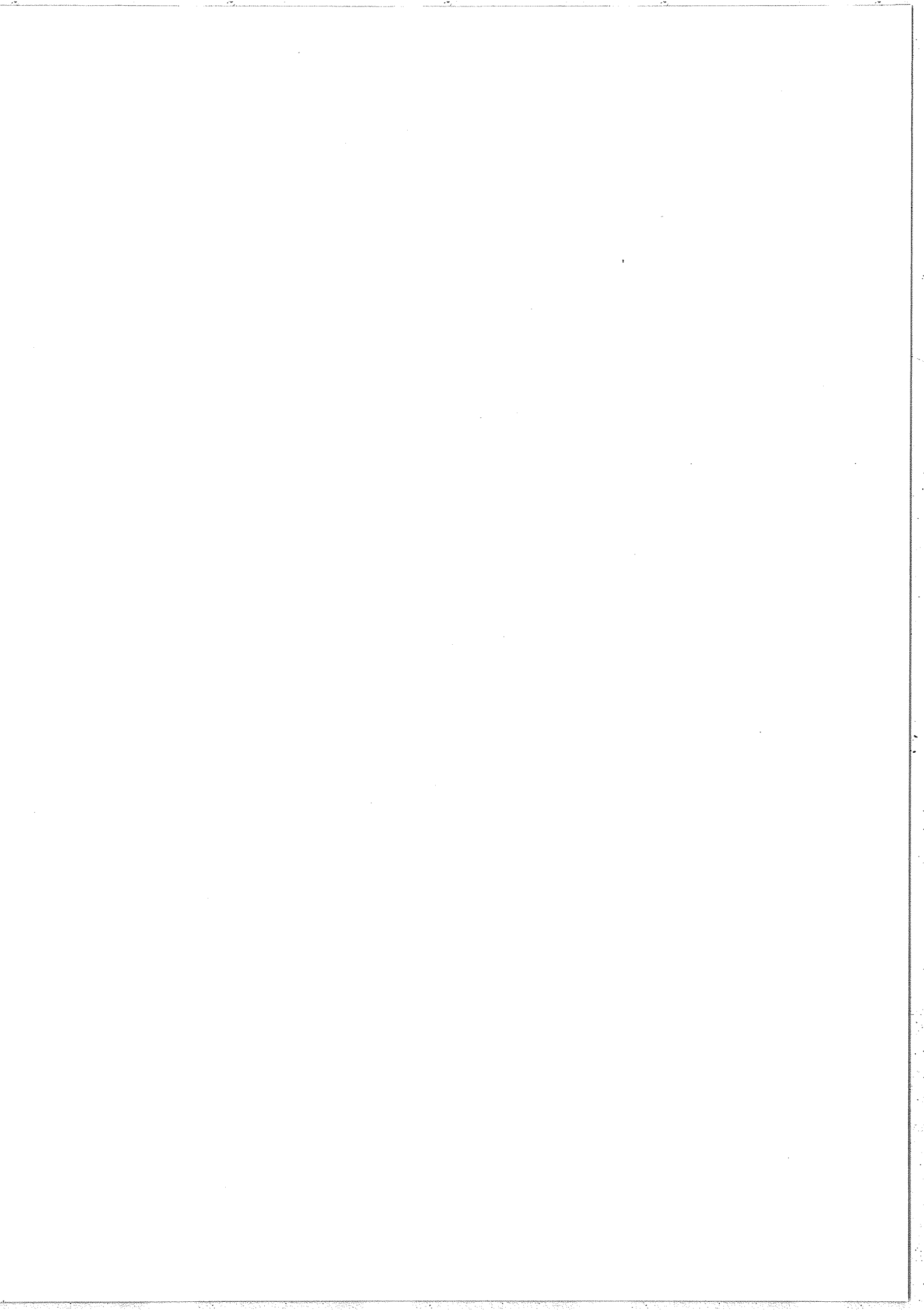


Figure 54 : Courbes de résonance calculées pour le système  $1s_3 \rightarrow 2p_2 \rightarrow 4s_1$  de Ne I (saturant :  $5965 \text{ \AA}$  ; sonde :  $6163 \text{ \AA}$  ;  $w_2/2\pi = 11 \text{ MHz}$  ;  $\mathcal{P}_1 - \mathcal{P}_0 = 0$ )  
 a) courbe A.L.N.  $w_1 = 11 \text{ MHz}$ ,  
 b) courbe A.L.N.  $w_1 = 110 \text{ MHz}$ ,  
 c) courbe d'absorption en présence du laser saturant :  $w_1 = 110 \text{ MHz}$ .



### 3° - Discussion : limites de l'étude théorique.

Le paragraphe du Chapitre B (partie théorique) où nous avons montré les limites du modèle utilisé pour le calcul pourrait être entièrement repris ici. Nous nous contenterons de rappeler les principaux points soulevés et de rediscuter brièvement l'un d'entre eux.

Les simplifications introduites dans le calcul nous ont conduits :

- i) à ne pas tenir compte de la dégénérescence des niveaux et de la polarisation des lasers ;
- ii) à ne traiter que très incomplètement l'effet des collisions ;
- iii) à ne pas tenir compte des effets liés à la propagation des faisceaux laser à travers le milieu atomique.

Nous ne discuterons pas de nouveau les 2 derniers points ici ; en ce qui concerne la dégénérescence des niveaux et la polarisation du laser saturant, nous voudrions montrer comment elles interviennent sur la fréquence de Rabi  $2\omega_1$ , paramètre essentiel pour l'effet Autler-Townes. Considérons le cas où le laser saturant est polarisé linéairement et prenons pour axe de quantification la direction de polarisation de ce laser. Dans ces conditions, seules les transitions  $\pi$  ( $\Delta M=0$ ) sont induites par le laser saturant entre les niveaux 0 et 1 de moments cinétiques respectifs J et J'. Pour la transition ( $JM \rightarrow J'M$ ), la fréquence de Rabi  $2\omega_1$  est telle que :

$$\omega_1^2 = \frac{3 g_1 \gamma_1 \lambda_1^3}{8 \pi h c} \begin{pmatrix} J & 1 & J' \\ -M & 0 & M \end{pmatrix}^2 P_L \quad (39)$$

$\lambda_1$  est la longueur d'onde dans le vide de la transition,  $\gamma_1$  est la probabilité de transition totale,  $g_1$  est la dégénérescence du niveau supérieur de la transition et  $P_L$  est la densité de puissance du laser saturant par unité de surface.

La fréquence de Rabi est proportionnelle à la racine carrée de la puissance du laser saturant (ou encore proportionnelle à l'amplitude du champ électrique oscillant correspondant), mais est aussi proportionnelle à la racine carrée de la probabilité de transition entre les sous-niveaux JM et J'M ( $2w_1 = \frac{\mathcal{P}_{JM \rightarrow J'M} \mathcal{E}_1}{\hbar}$ ).

Si la transition saturante n'est pas une transition  $J=0 \leftrightarrow J=1$  ou  $J=1 \leftrightarrow J=1$ , il y aura plusieurs fréquences de Rabi qui interviendront [85, 132] et cela pourra compliquer fortement le profil obtenu pour les courbes d'effet Autler-Townes (voir [118] et §.C.II.1°). Un calcul prenant en compte ces effets de dégénérescence Zeeman et de polarisation des lasers est actuellement en cours.

## II. Etude expérimentale.

Les observations expérimentales de l'effet Autler-Townes optique dans une vapeur sont assez peu nombreuses [101, 116-119, 125] et les études expérimentales détaillées de l'effet, notamment de sa dépendance par rapport à la puissance du laser, sont encore plus rares [101, 117, 118]. Quant aux conséquences d'un désaccord de fréquences sur le doublet Autler-Townes, elles n'ont, à notre connaissance, fait l'objet d'aucune étude antérieure à nos propres expériences [125].

Dans le néon, il n'existe qu'assez peu de systèmes à trois niveaux permettant d'étudier l'effet Autler-Townes optique pour un ensemble de raisons que nous allons énumérer :

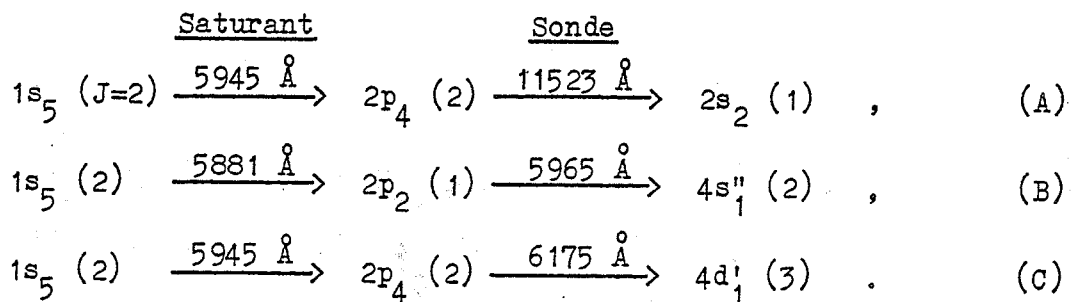
i) il est nécessaire de trouver des coïncidences entre des raies de lasers monofréquences et relativement puissants (lasers à gaz ou à colorants) et des raies de néon. Un des deux lasers au moins doit être suffisamment puissant pour saturer "sa" transition ;

ii) il existe souvent dans les spectres A.L.N. des "fonds" Doppler dus aux collisions (figure 41, [67, 90, 133], Chapitre D) ; les systèmes à trois niveaux en V ou en V renversé faisant intervenir les raies  $1s \rightarrow 2p$  du néon présentent ce genre de structures très gênantes car elles compliquent la forme de résonance en champs faibles ;

iii) les formes de raies des résonances à 3 niveaux en champs faibles sont souvent trop compliquées pour les systèmes en V ou en V renversé [cf. figure 39] ; au contraire, elles sont généralement lorentziennes pour les cascades (dans ce cas on obtient facilement  $n_{21} \approx 0$ ) (figures 34 et 40) ;

iv) on a besoin d'une forte probabilité de transition pour la transition saturante, ce qui est le cas pour certaines des transitions  $1s \rightarrow 2p$  du néon.

En tenant compte de toutes ces raisons et en considérant de plus qu'il faut trouver un système où la fréquence sonde est inférieure à la fréquence du saturant pour pouvoir observer l'effet Autler-Townes (voir §.C.I.), nous avons été amenés à étudier 3 systèmes en cascade de Ne I, soit :



Les valeurs des paramètres  $S$  ( $\epsilon = +1$ ,  $k_2/k_1 < 0$ ) et  $\rho$  sont respectivement :  $S_A = 0,516$  ;  $S_B = 0,986$  ;  $S_C = 0,963$  et  $\rho_A = 0,9995$  ;  $\rho_B = 0,235$  ;  $\rho_C = 0,379$ . Nous allons présenter successivement les expériences réalisées sur le système (A) avec un laser He-Ne et un laser à colorant, puis les expériences réalisées sur les systèmes (B) et (C) à l'aide de deux lasers à colorant.

1° - Expériences utilisant un laser He-Ne et un laser à colorant.

a) Description du montage expérimental :

Le système (A) que nous avons longuement étudié précédemment (voir B.II.1°) présente des caractéristiques relativement favorables pour l'observation de l'effet Autler-Townes et nous avons été naturellement conduits à tenter d'observer le phénomène sur ce système. Le montage expérimental est représenté sur la figure 55. Le laser He-Ne opérant à  $1,15 \mu$  a été décrit précédemment (§.B.II.1°) et peut, avec un mélange isotopique approprié dans la cuve absorbante, être balayé sans saut de mode. Le laser à colorant est un laser commercial (Spectra Physics, modèle 580) ; la puissance maximale disponible au niveau de la cuve d'expérience est de 40 mW environ. La cellule d'expérience a une longueur de décharge utile de 4 cm, son diamètre intérieur est de 5 mm, elle est remplie de néon 20 à une pression de 0,1 - 0,2 torr et le courant de décharge y est de 5 - 10 mA .

Le diamètre du faisceau visible est pratiquement constant sur toute la longueur de la décharge. Nous avons mesuré la distribution radiale de l'énergie dans ce faisceau et obtenu une valeur du diamètre (à  $1/e$  fois le maximum) de 0,4 mm. Pour une puissance de 40 mW ceci correspond à une densité puissance au centre du faisceau de  $320 \text{ mW/mm}^2$  .

Le faisceau sonde a également un diamètre pratiquement constant dans toute la zone d'interaction où il est, en outre, plus petit que le faisceau saturant. Les deux faisceaux se propagent en sens inverse, ce qui est nécessaire pour satisfaire à la condition d'observation  $0 < S < 1$  . Les faisceaux laser sont polarisés linéairement et, dans ces premières expériences, les deux directions de polarisation sont identiques. La fréquence du laser à colorant est fixée à la résonance exacte pour la transition  $1s_5 \rightarrow 2p_4$  ( $\delta_1 \approx 0$ ) et on enregistre, en fonction de la fréquence, les variations de la transmission du laser sonde produites par la présence du laser saturant.



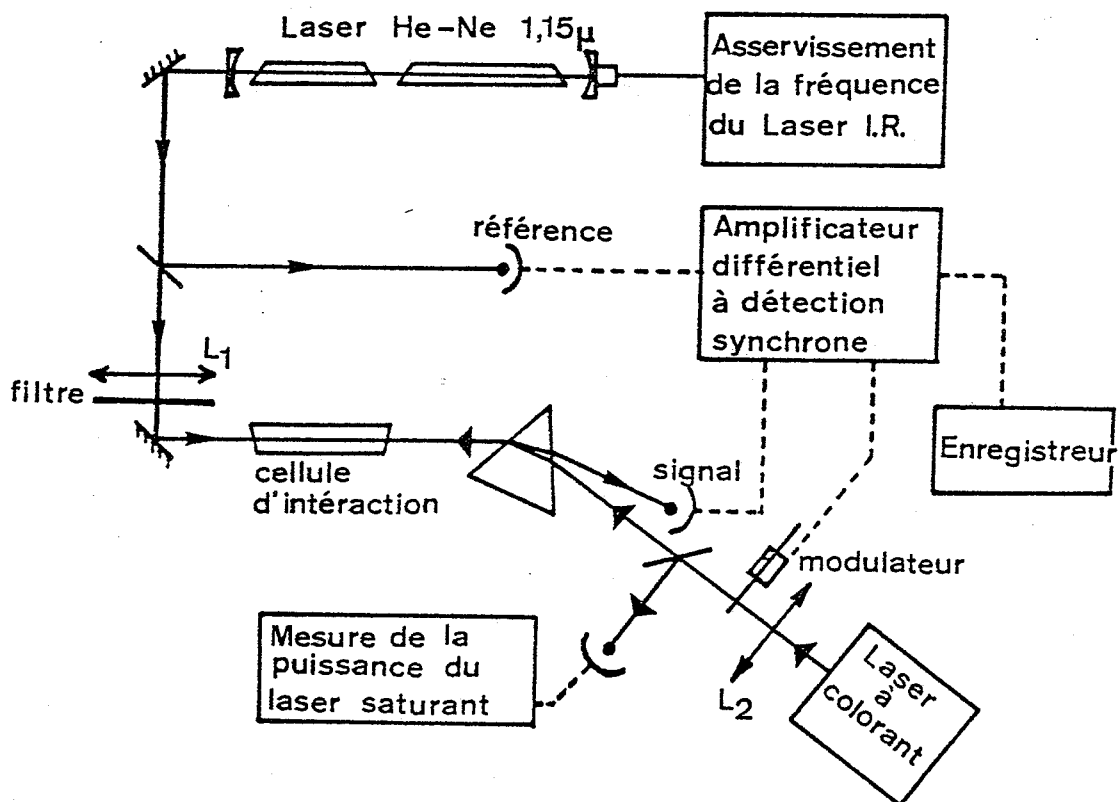


Figure 55 : Montage expérimental pour l'étude de l'effet Autler-Townes dans le système à trois niveaux (A).

Les autres éléments du montage expérimental (détecteurs, modulateur, amplificateur à détection synchrone, enregistreur,...) sont identiques à ceux utilisés dans nos expériences antérieures (cf. B.II.1°).

b) Observation de l'effet Autler-Townes et de ses caractéristiques.

Les courbes de résonance obtenues pour différentes puissances du laser saturant sont montrées sur la figure 56. A faible puissance du laser saturant, on observe une résonance identique à celles de la figure 35 et dont la largeur à faible pression est environ 40 MHz. Quand on augmente la puissance du laser saturant, on observe un dédoublement de la résonance, les deux composantes du doublet s'écartant de plus en plus à mesure que la puissance du laser saturant augmente (figure 56). Dans cette expérience nous avons préféré modifier la puissance du laser saturant (laser à colorant) en changeant la puissance du

laser de pompage ( $\text{Ar}^+$ ) plutôt que d'interposer des atténuateurs étalonnés sur le faisceau saturant, ceci dans le but d'éviter le plus possible les dérèglages géométriques.

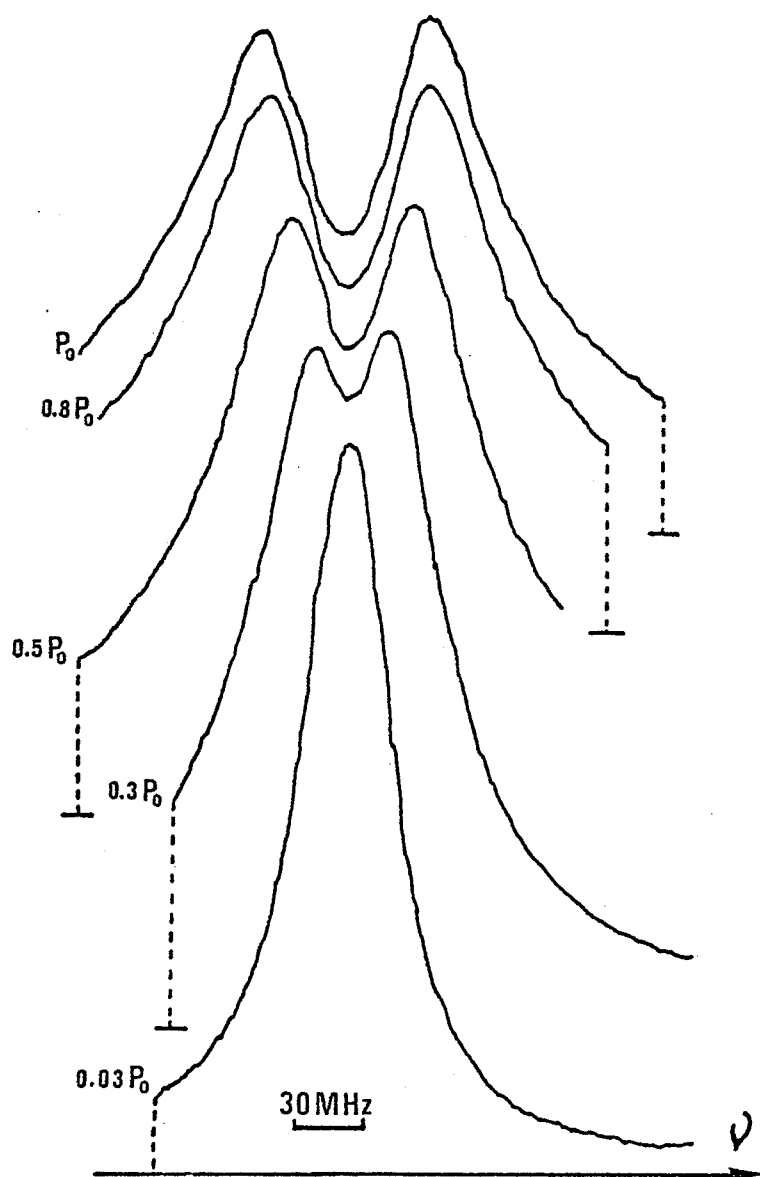


Figure 56 :

Evolution des courbes de résonances observées avec la puissance du laser saturant.

Nous avons mesuré la séparation du doublet pour différentes valeurs de la puissance  $P_L$  du laser saturant ; le résultat obtenu est illustré sur la figure 56. Comme le prévoit la théorie à la limite des très fortes puissances saturantes, on obtient un écart proportionnel à

la racine carrée de la puissance saturante. Une telle dépendance a également été observée par Cahuzac et Vetter dans une expérience sur le xénon [101].

En utilisant la valeur connue de la probabilité de transition pour la raie  $1s_5 \rightarrow 2p_4$  du néon [129-131], nous pouvons calculer l'écart attendu entre les deux composantes du doublet ; on obtient :

$$\Delta\nu_2 = 2\rho \frac{w_1}{2\pi} \approx \frac{2w_1}{2\pi} = 4,9 \sqrt{P_L} \quad (\Delta\nu_2 \text{ en MHz et } P_L \text{ en mW/mm}^2).$$

Pour une densité de puissance de  $320 \text{ mW/mm}^2$  on trouve ainsi  $\Delta\nu_2 = 87 \text{ MHz}$  ; la valeur maximale observée expérimentalement pour l'écart du doublet est de  $93 \text{ MHz}$  (figure 57).

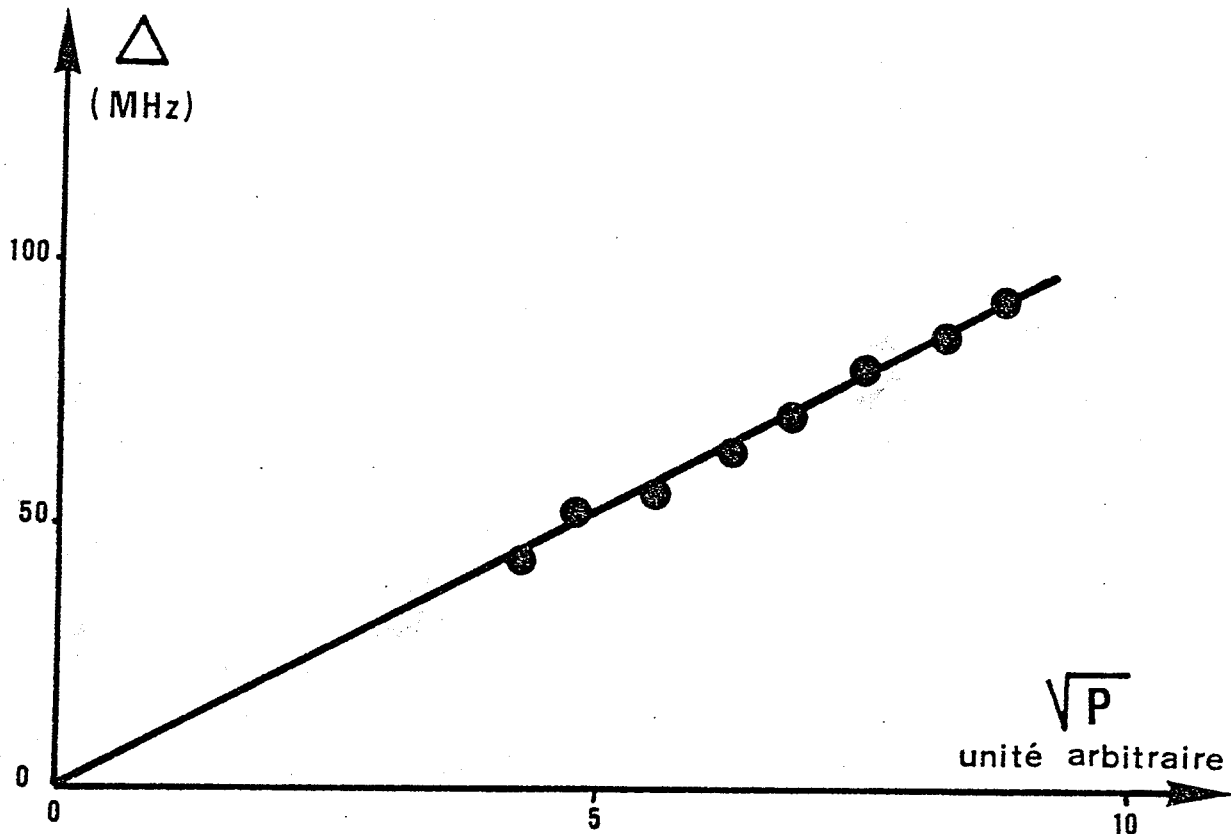


Figure 57 : Evolution de la séparation du doublet avec la puissance du laser saturant.

Notre laser infrarouge a un domaine de balayage beaucoup trop étroit pour permettre une étude des effets liés au désaccord en fréquence du laser saturant. Néanmoins, le domaine de balayage étant centré sur la fréquence du  $^{20}\text{Ne}$ , nous pouvons utiliser du  $^{22}\text{Ne}$  dans

la cellule d'expérience et profiter ainsi du déplacement isotopique  $\Delta T = \nu_2(^{22}\text{Ne}) - \nu_2(^{20}\text{Ne})$  pour obtenir une valeur particulière de  $\delta_1$ , soit :  $\frac{\delta_1}{2\pi} = \frac{\omega_{10}}{\omega_{21}} \Delta T$ . Compte tenu de la valeur du déplacement isotopique pour la raie infrarouge [63, 68, 100] on obtient ainsi  $\frac{\delta_1}{2\pi} \approx 500$  MHz. Pour une même valeur de la puissance saturante nous avons mesuré l'écart du doublet avec du  $^{20}\text{Ne}$  dans la cellule, puis avec du  $^{22}\text{Ne}$  dans la cellule (c'est-à-dire pour  $\frac{\delta_1}{2\pi} \approx 0$  et pour  $\frac{\delta_1}{2\pi} \approx 500$  MHz) ; nous avons trouvé le même écart dans les deux cas et nous n'avons en fait observé aucune modification significative du doublet.

En résumé, on obtient bien dans ce cas, conformément aux prévisions théoriques du §.C.I., un écart du doublet proportionnel à la racine carrée de la puissance laser, indépendant de  $\delta_1$  et pratiquement égal à la fréquence de Rabi  $2w_1$ .

- c) Effets liés aux polarisations des lasers et à la dégénérescence des niveaux.

Les deux faisceaux laser sont polarisés linéairement et nous devons prendre en compte la dégénérescence Zeeman des trois niveaux du système (figure 35). Les probabilités de transition relatives des transitions entre sous-niveaux Zeeman sont indiquées sur la figure 58 : l'axe de quantification est la direction de polarisation du laser saturant et la probabilité de transition totale est égale à 1 pour chacune des raies. En utilisant l'expression donnée précédemment pour  $w_1^2$  (formule (39)) et compte tenu de la valeur du symbole  $3j$  :

$$\begin{pmatrix} J & 1 & J \\ -M & 0 & M \end{pmatrix} = (-)^{J-M} \frac{M}{\sqrt{J(J+1)(2J+1)}}, \quad \text{on obtient pour la fréquence}$$

de Rabi correspondant aux transitions  $\pi$  avec  $|M| = 2$  une valeur  $w_1'$  double de celle correspondant aux transitions  $\pi$  avec  $|M| = 1$  ( $w_1' = 2w_1$ ).

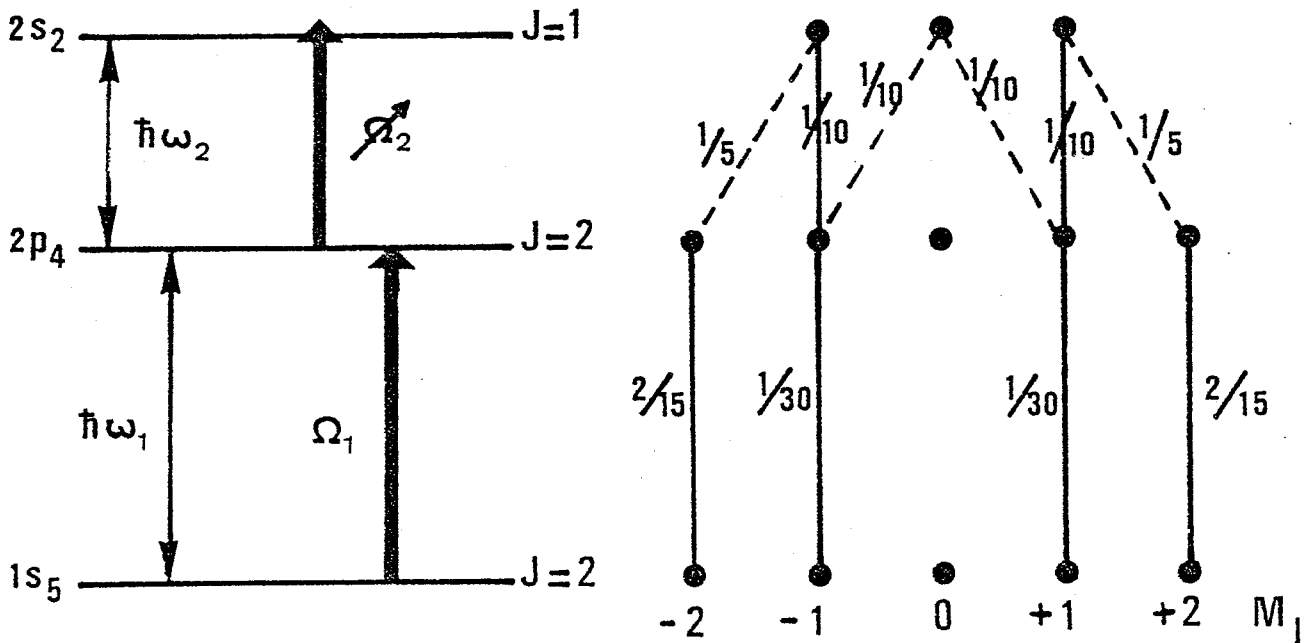


Figure 58 : Probabilités de transitions relatives entre sous-niveaux Zeeman pour le système  $1s_5 \rightarrow 2p_4 \rightarrow 2s_2$ .

Pour une polarisation du laser sonde parallèle à celle du laser saturant (traits pleins sur la figure 58 pour la transition sonde), on ne verra que les transitions avec  $|M| = 1$  et par conséquent une seule fréquence de Rabi  $2\omega_1$ ; c'est dans ces conditions que nous avons travaillé précédemment.

Par contre, pour une polarisation du laser sonde perpendiculaire à celle du laser saturant (traits pointillés sur la figure 58 pour la transition sonde), on verra à la fois les transitions  $|M| = 1$  et  $|M| = 2$  et donc les deux fréquences de Rabi correspondantes  $2\omega_1$  et  $2\omega'_1$ . On peut s'attendre dans ce cas à observer la superposition de deux "doublets" (\*).

Les phénomènes ne sont en fait pas si simples car il faut tenir compte du couplage entre les systèmes  $|M| = 1$  et  $|M| = 2$  introduit par l'émission spontanée de photons  $\sigma$  et du pompage optique [132].

(\*) Skribanowitz et ses collaborateurs ont proposé d'utiliser de tels effets pour identifier les transitions moléculaires [73, 85].

Dans le cas où les faisceaux laser sont polarisés parallèlement, le système  $J=2 \rightarrow J=2 \rightarrow J=1$  nous permet de travailler pratiquement avec un vrai système à 3 niveaux (on a en fait 2 systèmes à trois niveaux ayant les mêmes caractéristiques et couplés seulement par l'émission spontanée de photons  $\sigma$  en cascade sur les deux transitions). Alors que dans un jet atomique on peut parfois préparer, par un pompage optique préalable, un vrai système à 3 niveaux [114, 115], dans une vapeur on se trouve rarement dans une situation aussi favorable ; le cas sur lequel nous avons tout d'abord observé l'effet Autler-Townes (Fig. 55) se rapproche beaucoup du vrai système à trois niveaux. L'étude théorique complète du système à trois niveaux dégénérés tenant compte des polarisations et du couplage par émission spontanée est actuellement en cours.

L'expérience très simple que nous allons maintenant décrire a seulement pour but de montrer, à travers la dépendance du doublet observé avec la direction de polarisation du laser sonde, l'importance de l'existence des deux fréquences de Rabi très différentes. L'expérience que nous avons réalisée et dont le résultat est illustré sur la figure 59, consiste simplement à tourner la direction de polarisation du laser sonde par rapport à celle du laser saturant. On voit sur la figure 58 que, pour une même puissance du laser saturant, l'écart apparent du doublet passe de 50 MHz à près de 100 MHz. On obtient là une manifestation particulièrement frappante de l'existence des deux fréquences de Rabi.

Nous avons essayé de résoudre un éventuel quadruplet (en choisissant l'angle  $\Phi$  entre les 2 polarisations et en essayant d'améliorer divers paramètres expérimentaux), mais nous n'avons pas pu réussir, peut-être à cause des largeurs de raie excessives. Compte tenu de la signification physique du doublet Autler-Townes (absence d'atomes en résonance donnant un trou dans la courbe de résonance), il est probablement plus facile d'observer un multiplet Autler-Townes dans une expérience en jet atomique.

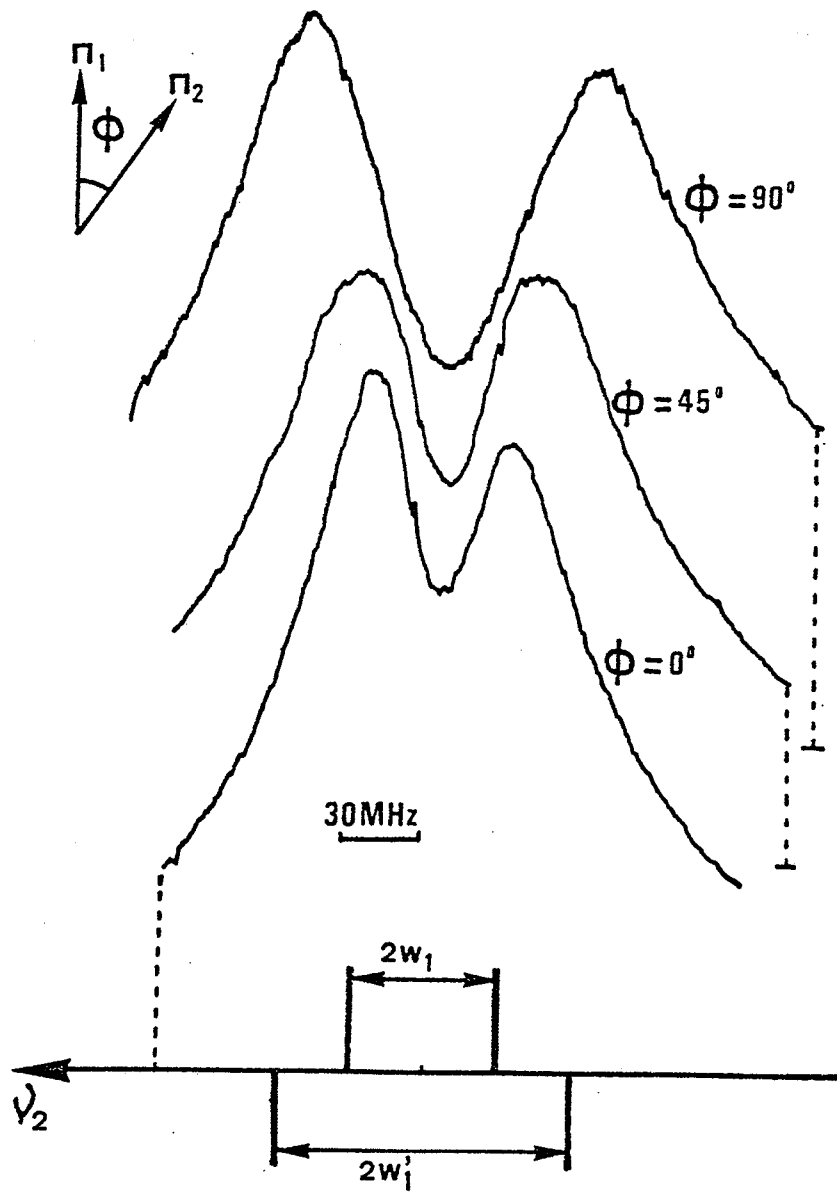
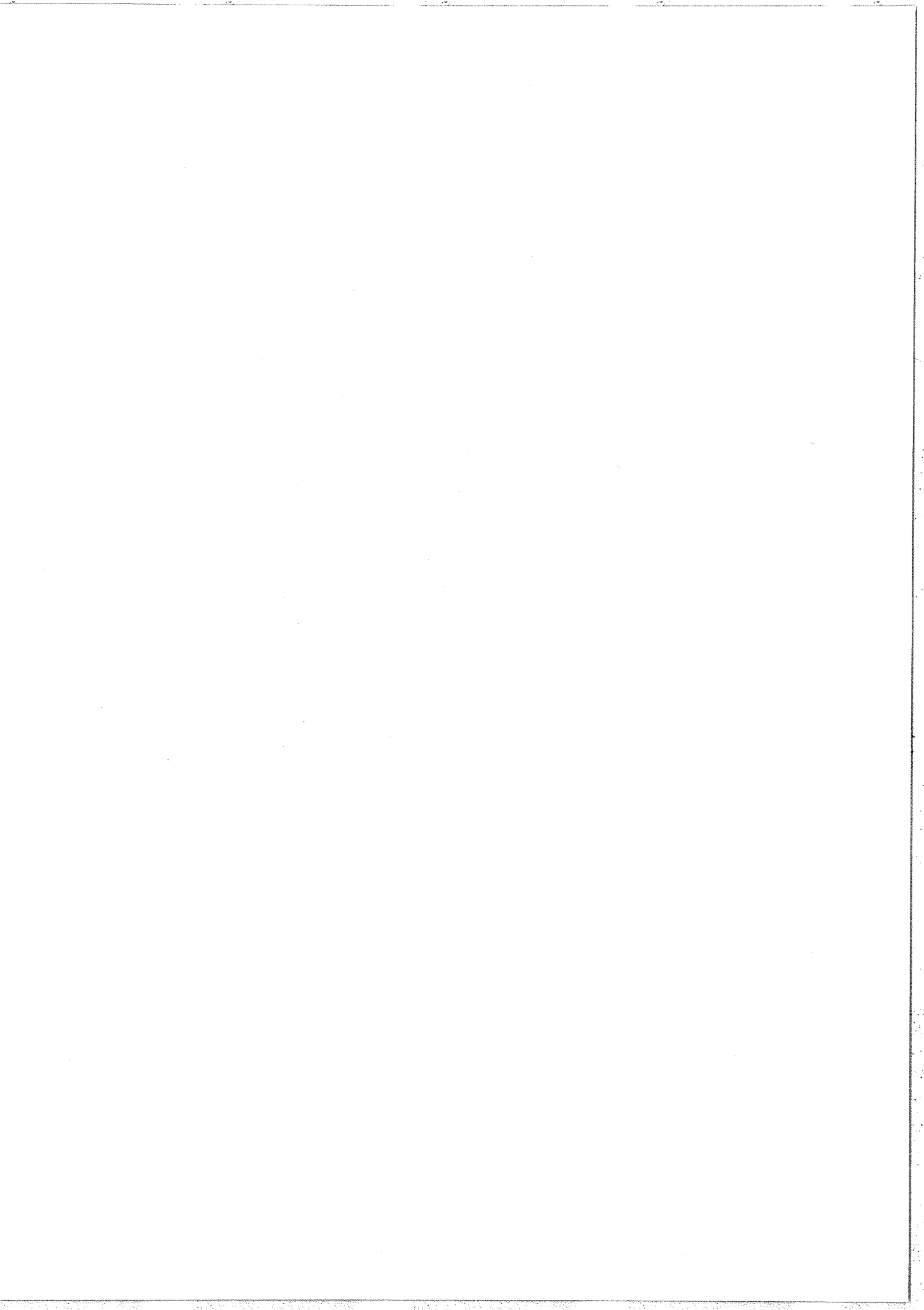


Figure 59 : Courbes de résonance obtenues pour une même puissance saturante et pour différentes directions de polarisation du laser sonde .





2° - Expériences utilisant deux lasers à colorants.

a) Le montage expérimental.

Ces expériences ont été réalisées à l'aide de deux lasers à colorants monofréquence commerciaux (Spectra Physics modèle 580). Le montage expérimental est représenté sur la figure 60. Les deux faisceaux laser, strictement colinéaires et se propageant en sens opposés, sont envoyés dans la cellule d'interaction (diamètre : 1,5 cm ; longueur de décharge utile : 5 cm) remplie de  $^{20}\text{Ne}$  (pression : 0,1-0,2 torr ; courant de décharge : 10 mA). Pour éviter tout couplage, les deux lasers ont des polarisations perpendiculaires et sont mélangés et séparés de part et d'autre de la cellule d'interaction à l'aide de prismes biréfringents (prisme de Glan). On ne pourrait pas utiliser un tel montage pour étudier comme dans le cas précédent des effets de polarisations relatives des deux lasers [118].

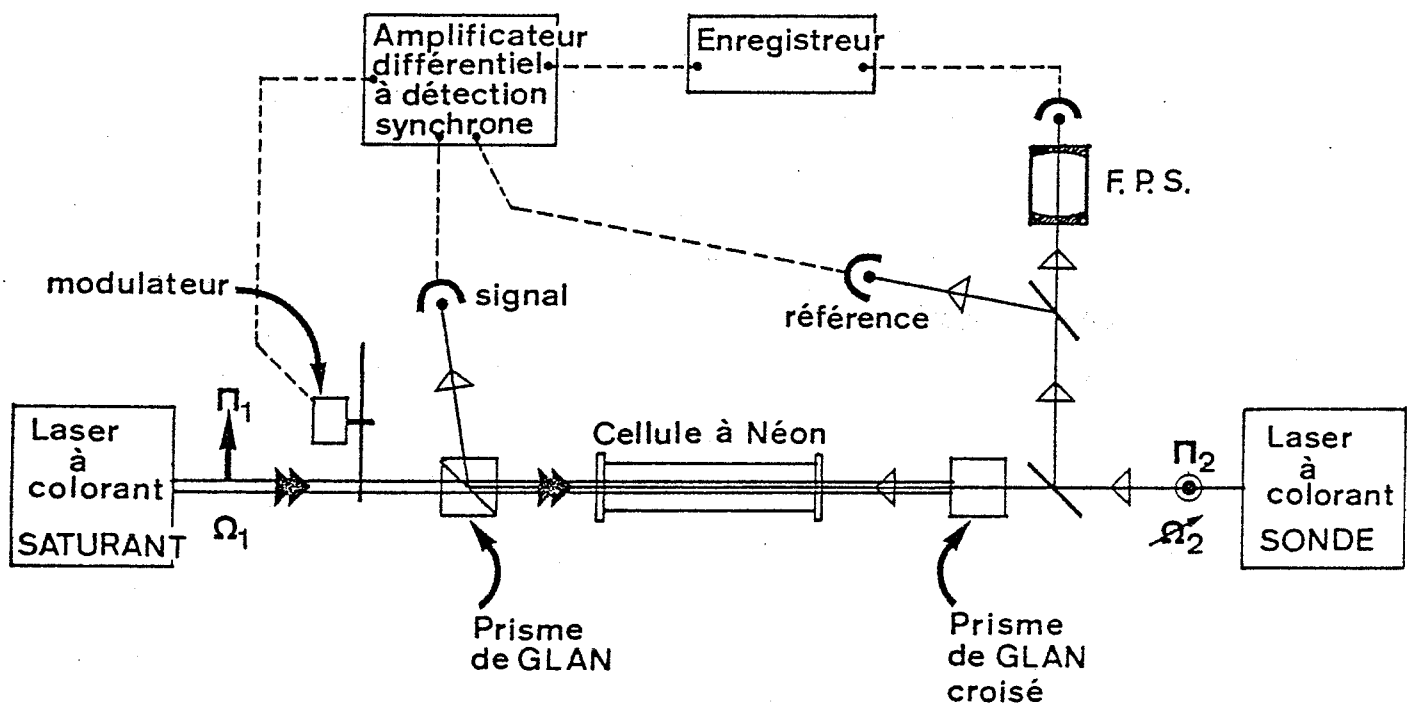


Figure 60 : Montage expérimental pour l'étude de l'effet Autler-Townes dans les systèmes à trois niveaux (B) et (C) .

Comme dans nos montages précédents, nous utilisons une méthode différentielle pour réduire l'effet des fluctuations d'intensité du laser sonde ; on peut ainsi observer directement à l'oscilloscope la différence (nulle en l'absence du faisceau saturant) des signaux donnés par les deux photodiodes (figure 62). Pour observer le signal dans de meilleures conditions, on module le faisceau saturant et on utilise un amplificateur à détection synchrone.

Les balayages en fréquence du laser sonde sont étalonnés à l'aide du Fabry-Perot sphérique de 1 m de long (intervalle spectral libre 75 MHz) dont la température est stabilisée.

Le faisceau du laser saturant est légèrement plus focalisé que dans les expériences précédentes, de sorte qu'avec une puissance de 40 mW au niveau de la cuve, la densité de puissance est environ  $1 \text{ W/mm}^2$ . Comme précédemment, le faisceau sonde a, dans la zone d'interaction, un diamètre pratiquement constant et plus petit que celui du faisceau saturant.

- b) Effet Autler-Townes : observation, influence du désaccord de fréquence du laser intense.

La figure 61 présente les doublets Autler-Townes enregistrés pour les systèmes (B) et (C) dans le cas  $\delta_1 = 0$ . Pour le système (C), la longueur d'onde du laser sonde ( $6175 \text{ \AA}$ ) est située sur le bord du domaine de fonctionnement de notre laser à Rhodamine 6G et l'intensité du laser était faible et fluctuante. De plus, la probabilité de la transition sonde est assez faible dans ce cas. Ceci explique le mauvais rapport signal sur bruit obtenu et nous a empêché d'étudier plus complètement le système (C). On peut néanmoins remarquer que le contraste obtenu dans ce cas pour le doublet Autler-Townes est très bon. La situation, pour ce qui concerne le fonctionnement du laser à colorant et la probabilité de la transition sonde, est beaucoup plus favorable dans le cas (B) et le rapport signal sur bruit obtenu est bien meilleur. Nous avons même pu observer le signal Autler-Townes directement à l'oscilloscope (sans modulation ni détection synchrone) (figure 62). La réduction du contraste sur la courbe expérimentale par rapport aux courbes théoriques

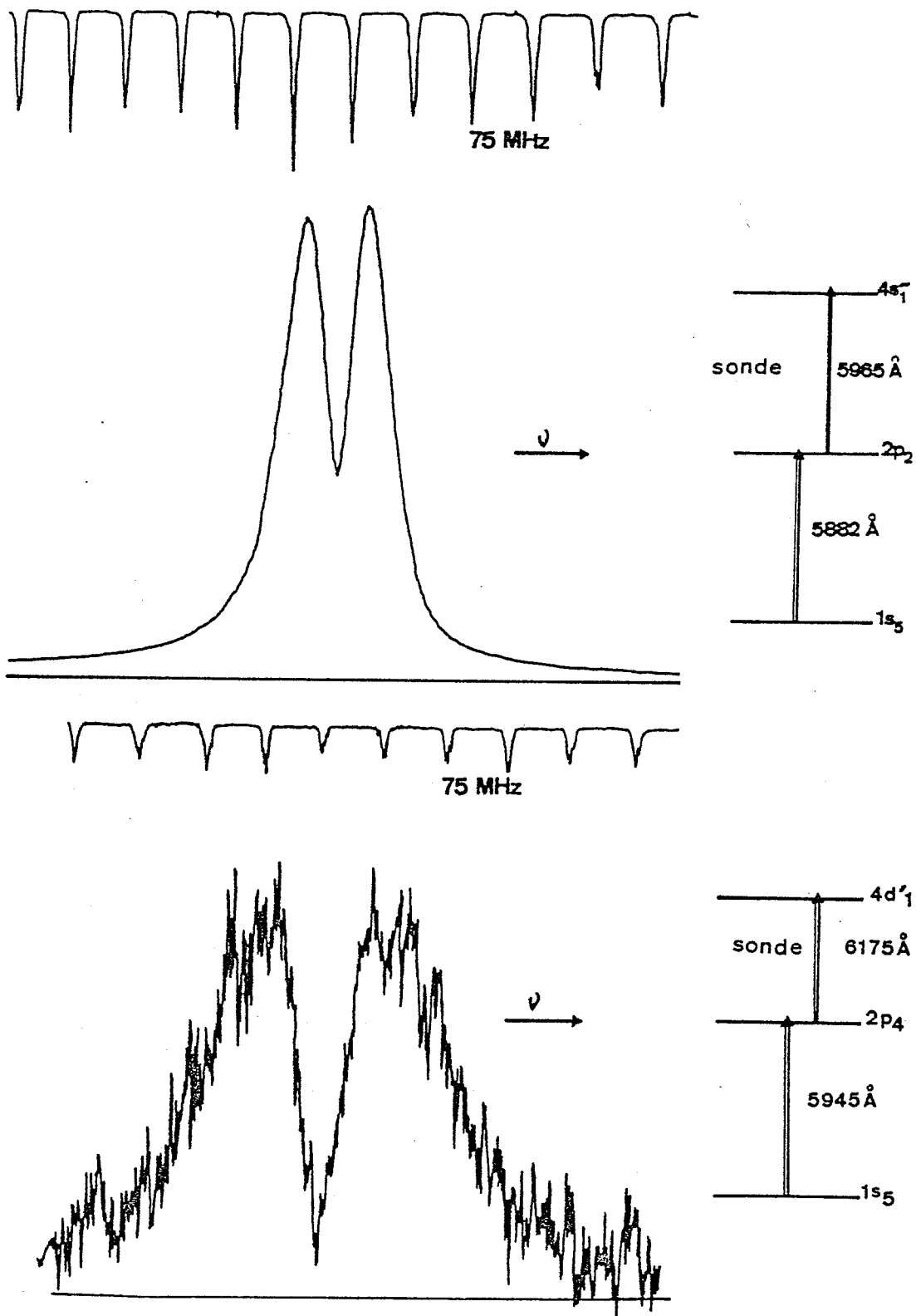
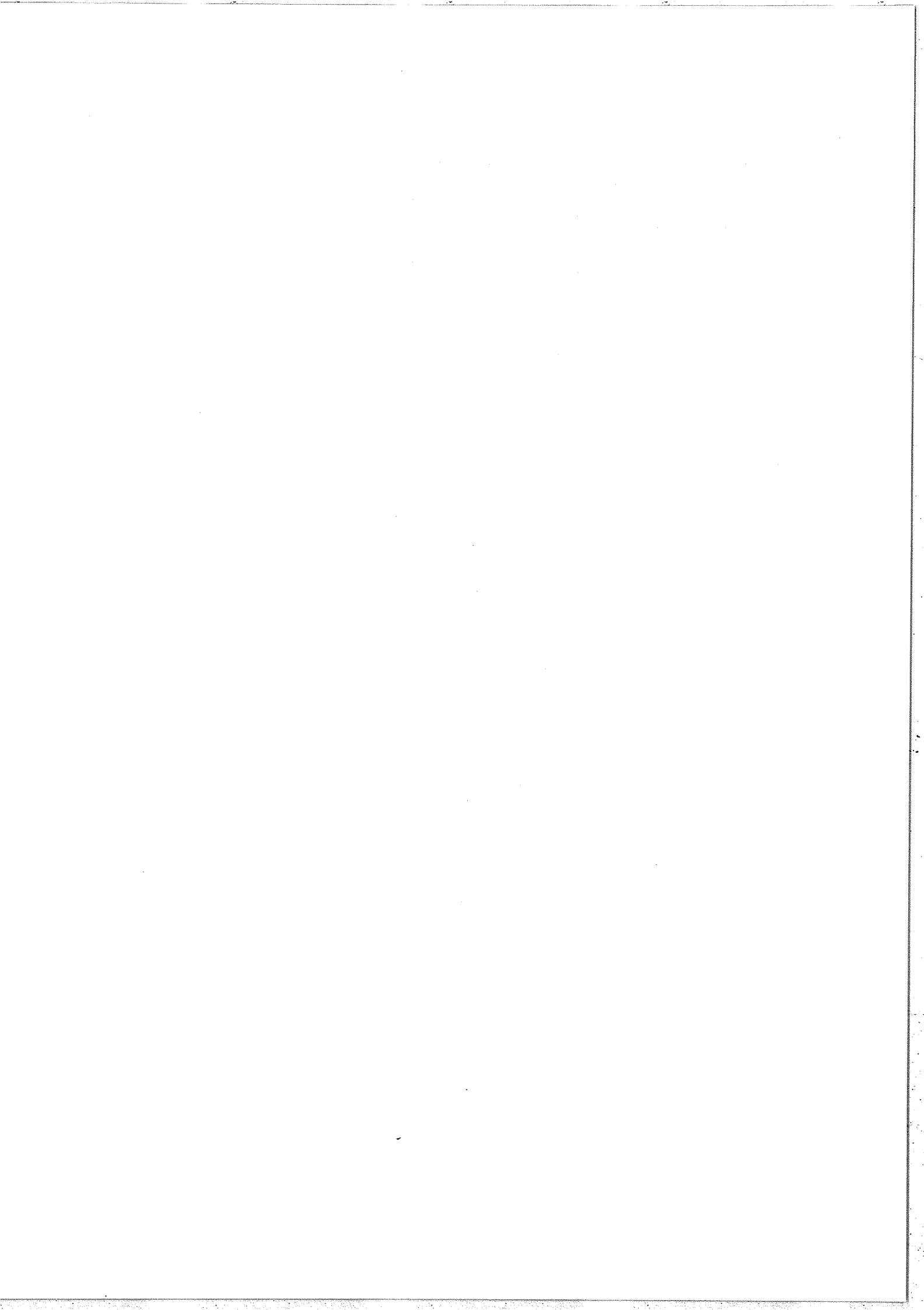


Figure 61 : Courbes de résonances expérimentales pour les systèmes à trois niveaux (B) et (C) .



(figures 51 et 52) n'est probablement pas seulement due aux imperfections de l'expérience (jitter de fréquence des lasers, inhomogénéité des densités de puissance, fluctuations de puissance, durées de vie diminuées par l'effet des collisions,...) mais également à l'influence de la puissance non négligeable du laser sonde telle qu'elle apparaît sur les courbes théoriques du Chapitre C.II (figure 51).

Nous avons dû, au cours de l'expérience, réduire l'intensité du faisceau sonde pour pouvoir observer le dédoublement. Nous avons, à cette occasion, pu constater que l'amplitude du signal (qui est rappelons-le un signal de transmission) n'était pas changée de manière importante quand nous avons diminué fortement l'intensité du faisceau sonde. Ceci est en accord avec le comportement des amplitudes des coefficients d'absorption de la figure 51.

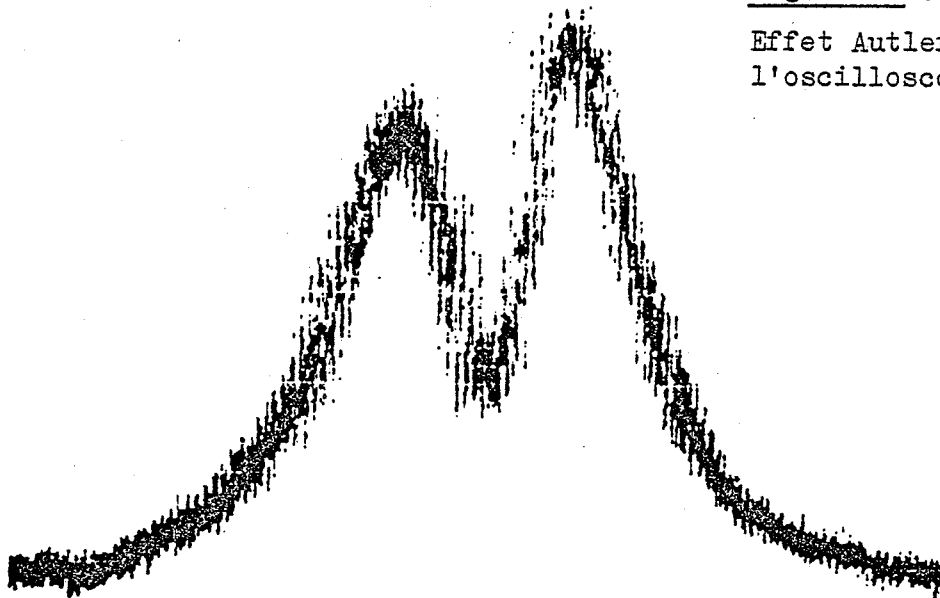


Figure 62 :

Effet Autler-Townes observé à l'oscilloscope (système (B)).

La figure 63 montre l'évolution du signal avec la puissance du laser saturant ; l'évolution observée est semblable à celle obtenue dans le cas (A).

Disposant de deux lasers accordables, il nous est parfaitement possible d'étudier systématiquement l'effet d'un désaccord de fréquence

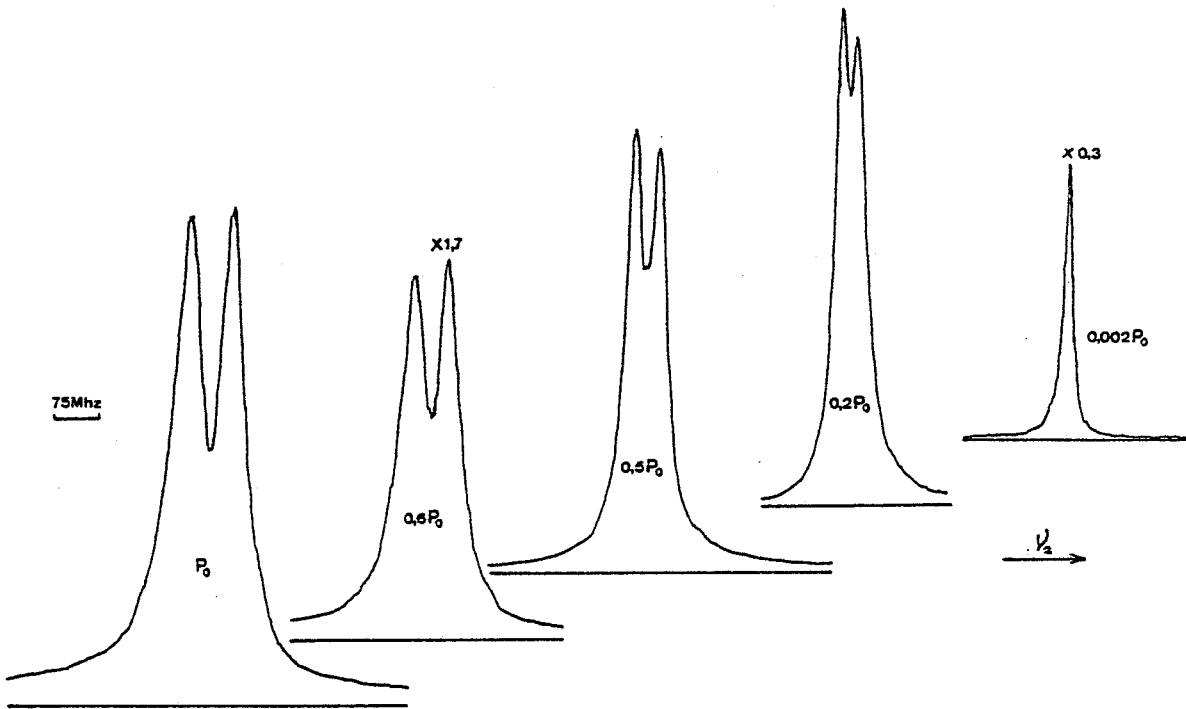


Figure 63 : Evolution de la courbe de résonance expérimentale avec la puissance du laser saturant (système (B)) .

du laser saturant ( $\delta_1 \neq 0$ ) sur l'aspect du doublet Autler-Townes (figures 64-65). On retrouve bien, sur ces courbes expérimentales, le comportement prévu dans l'étude théorique :

- i) l'écart du doublet n'est que de 60 MHz (la fréquence de Rabi calculée à partir de la densité d'énergie et de la probabilité de transition est environ 250 MHz) et ne dépend pas de  $\delta_1$  dans tout le domaine où l'on peut observer le doublet (figure 65) ;
- ii) le comportement dissymétrique des deux composantes est bien vérifié, la composante qui disparaît étant la composante "bleue" pour  $\delta_1 > 0$  et la composante "rouge" pour  $\delta_1 < 0$  (figure 64). De plus, on trouve bien que l'intensité de l'autre composante commence par augmenter avant de décroître lentement quand  $|\delta_1|$  augmente (figure 66). Ce comportement, prévu dans notre discussion graphique (figure 50), est également apparent sur les courbes théoriques de la figure 52.

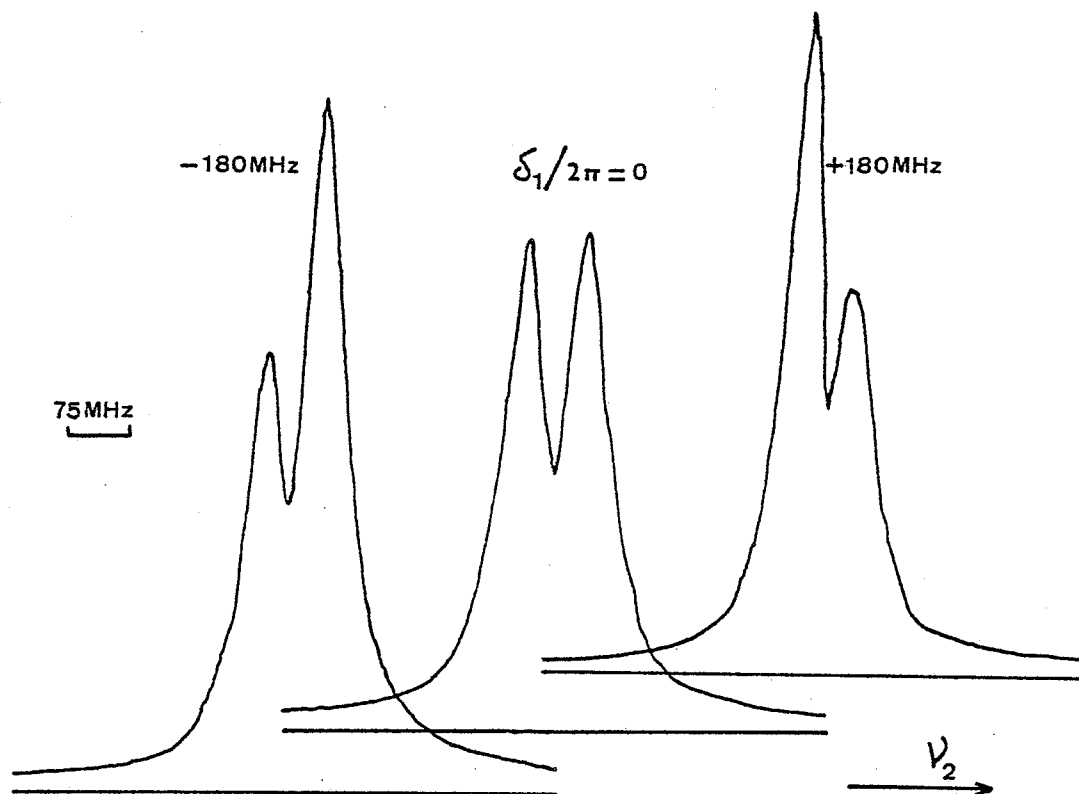


Figure 64 : Modification des intensités des composantes du doublet Autler-Townes pour  $\delta_1 > 0$  ou  $\delta_1 < 0$  (système (B)).

Pour le plus grand désaccord  $\delta_1$  utilisé dans nos expériences,  $\left(\frac{\delta_1}{2\pi} = 3600 \text{ MHz}\right)$  soit 2,5 fois la largeur Doppler), l'intensité de la résonance est seulement 5 fois plus faible que lorsque le laser saturant est à la résonance ( $\delta_1=0$ ). Ceci est probablement dû à l'apparition de la résonance correspondant à la transition à deux photons avec effet Doppler résiduel dont nous avons discuté précédemment (C.I.2°), mais nous n'avons aucun moyen dans cette expérience de mesurer simultanément la position absolue de la résonance et  $\delta_1$  pour le vérifier.

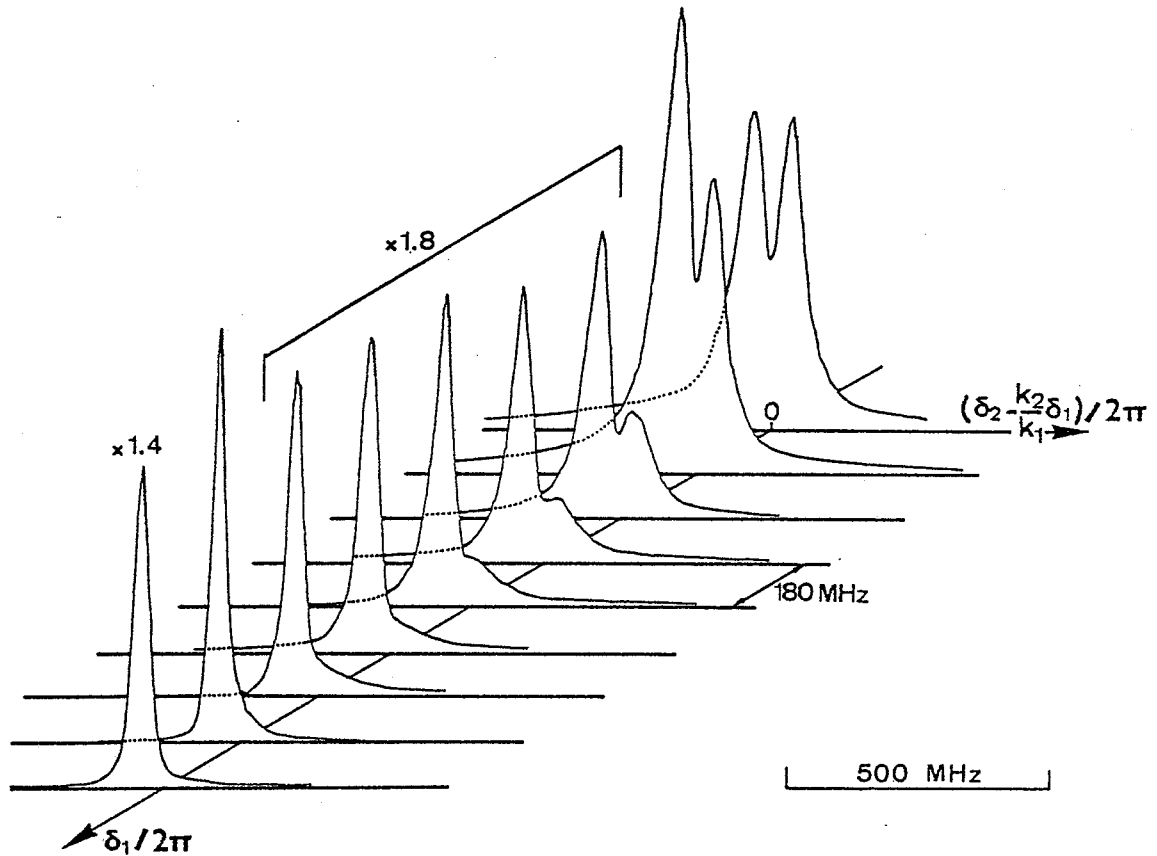


Figure 65 : Evolution des courbes de résonance expérimentales avec  $\delta_1$  (système (B)). L'amplitude des courbes doit être multipliée par les facteurs indiqués sur la figure pour permettre de les comparer entre elles.

Arrivé au terme de notre étude de l'effet Autler-Townes tel qu'on peut l'observer en phase vapeur, nous pouvons résumer brièvement les principaux résultats obtenus et envisager les prolongements possibles de notre travail.

Notre étude théorique de l'effet Autler-Townes nous a permis de montrer que l'effet observé dans une expérience en jet atomique ou dans une vapeur est très différent ; dans un jet on observe un dédoublement des niveaux atomiques sous l'action du champ saturant et dans une vapeur on observe un trou dans la courbe de résonance (pas d'atome en interaction résonnante) qui est la conséquence de ce dédoublement de niveaux.



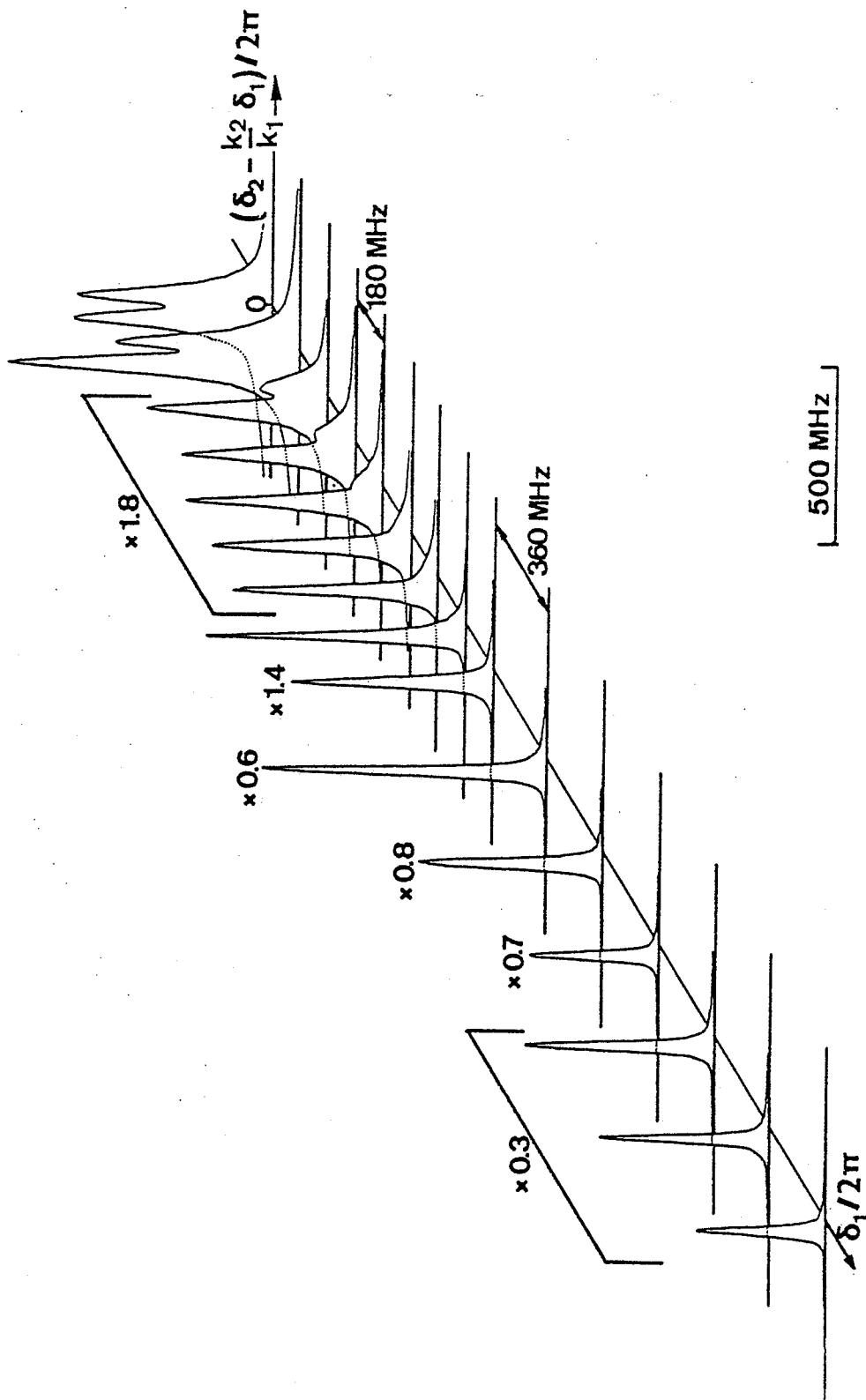
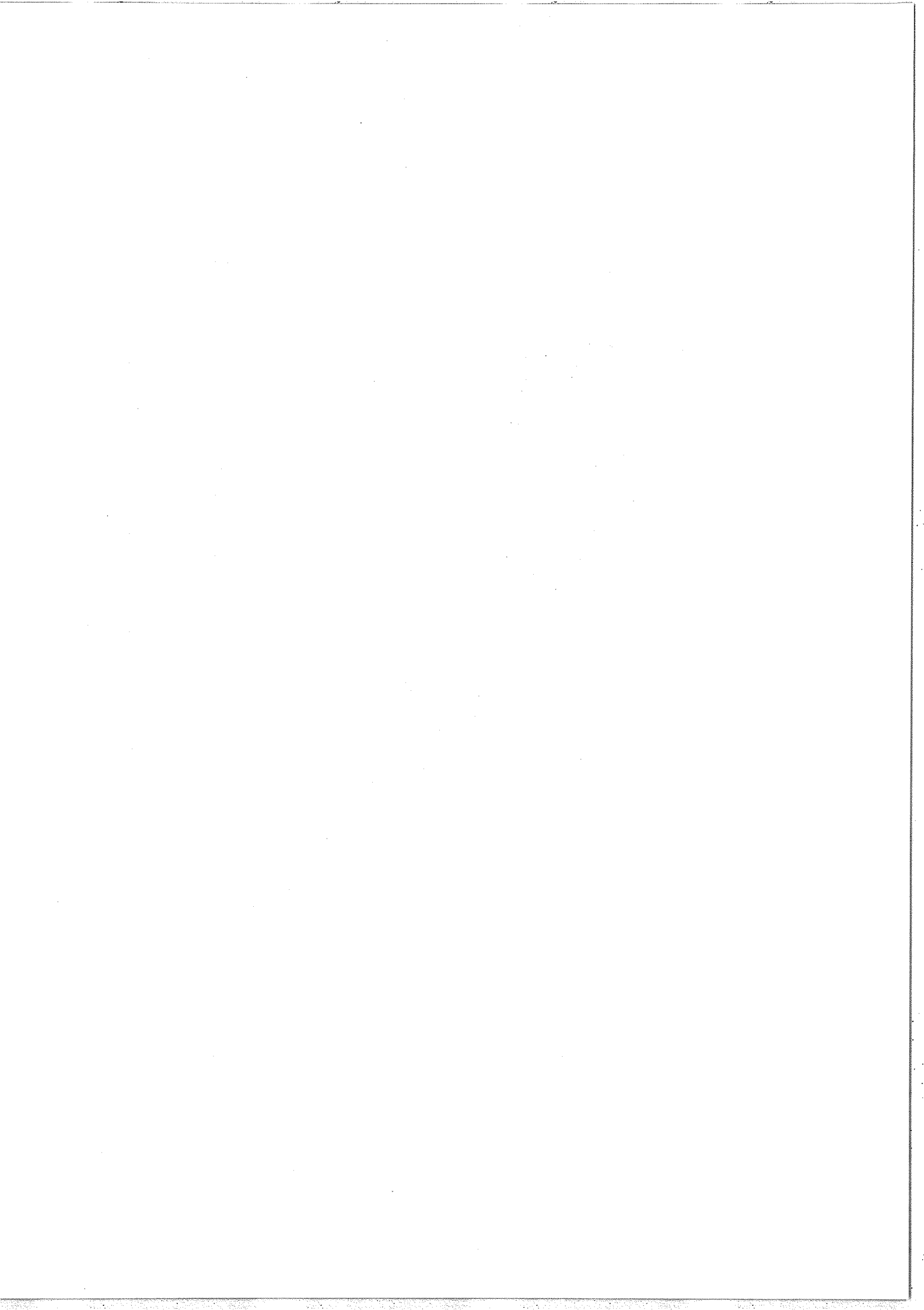


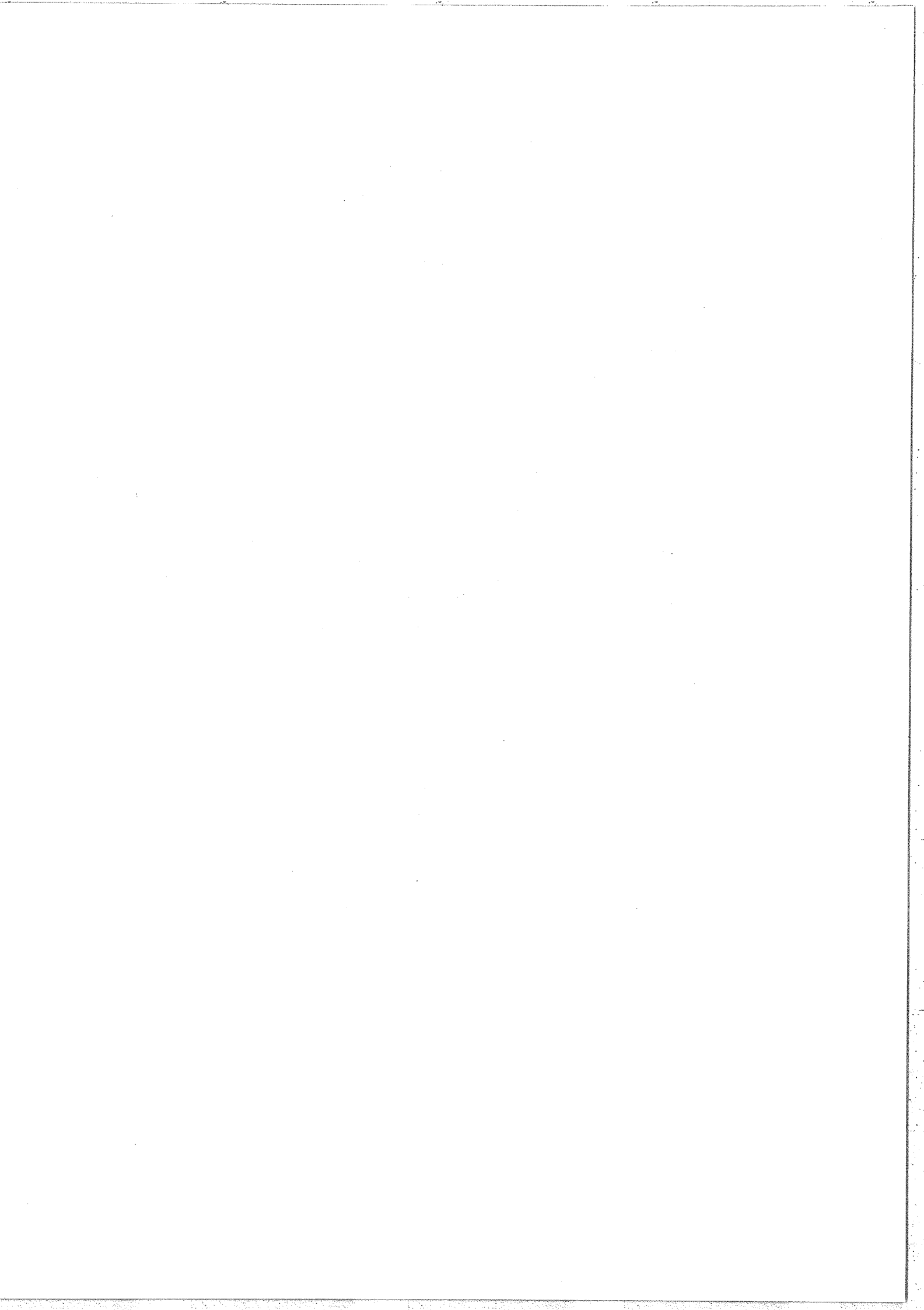
Figure 66 : Evolution des courbes de résonance expérimentales avec  $\delta_1$  (système (B)). L'amplitude des courbes doit être multipliée par les facteurs indiqués sur la figure pour permettre de les comparer entre elles.



Nous avons également montré l'importance du paramètre  $S$  (rapport des fréquences des lasers) et du désaccord de fréquence du laser saturant. Expérimentalement nous avons observé l'effet dans des cas correspondant à des valeurs de  $S$  très différentes, nous avons vérifié que l'écart est proportionnel à la racine carrée de la puissance saturante et nous avons étudié les effets d'un désaccord du laser saturant sur l'écart du doublet et sur son aspect. Nous avons également montré l'importance de la dégénérescence et de la polarisation des lasers sur le doublet observé.

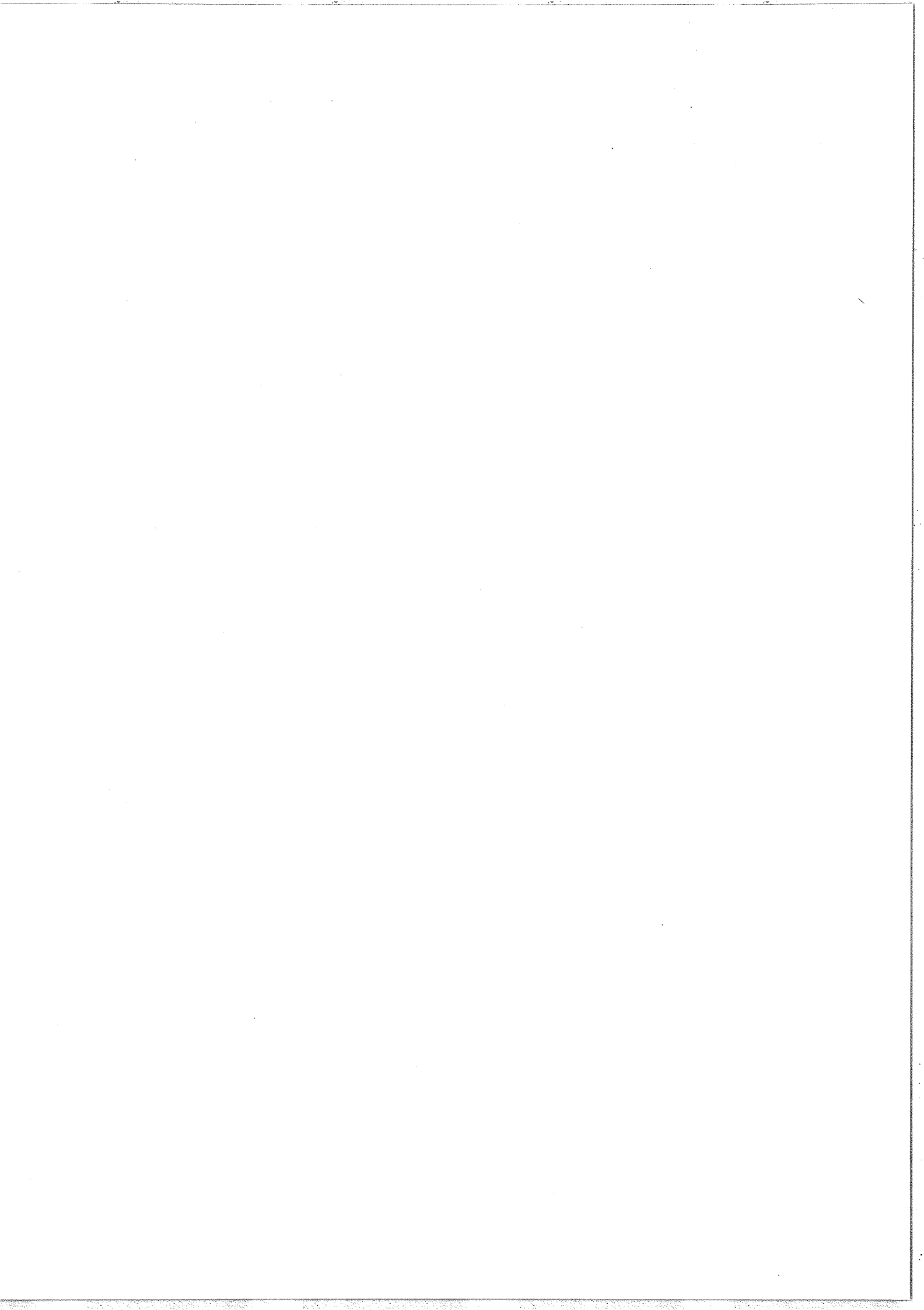
On peut envisager de poursuivre ce genre d'étude en essayant par exemple d'observer le trou Autler-Townes dans le cas particulier où le faisceau saturant n'est pas absorbé en l'absence du champ sonde (figure 54). On peut surtout étudier de façon quantitative les phénomènes liés à la dégénérescence Zeeman des niveaux atomiques et à la polarisation des lasers. Nous avons, par exemple, déjà observé les effets combinés du dédoublement Autler-Townes et de la biréfringence induite par le laser saturant ([134], Chapitre D).

Une autre application, souvent proposée, de la mesure de l'écart Autler-Townes est la détermination absolue de la probabilité de la transition saturée [101] ; le problème est alors de mesurer avec une précision convenable la densité de puissance du laser saturant. Il est certainement plus réaliste, dans de nombreux cas, d'utiliser la valeur de la probabilité de transition mesurée par ailleurs ou calculée et d'en déduire la densité de puissance correspondant à l'écart Autler-Townes mesuré.



CHAPITRE D

---



DICHOÏSME ET BIREFRINGENCE INDUITS PAR UN LASER POLARISE LINEAIREMENT(effet Kerr optique)

De nombreux auteurs se sont récemment intéressés, tant du point de vue expérimental que du point de vue théorique, à l'anisotropie provoquée dans les systèmes atomiques ou moléculaires dégénérés par un faisceau laser intense et polarisé et, en particulier, aux phénomènes non linéaires de biréfringence qui peuvent ainsi apparaître [87, 90, 133, 135-150]. Par interaction avec le laser, le milieu atomique "s'oriente" (lumière polarisée linéairement) ou "s'aimante" (lumière polarisée circulairement) et l'on peut obtenir des effets analogues à l'effet Kerr et à l'effet Faraday. Ces phénomènes ont donné lieu à des applications spectroscopiques importantes dans le domaine de la spectroscopie Raman ("Raman induced Kerr effect") [136, 147, 149] et dans celui de la spectroscopie sans effet Doppler ("Polarization spectroscopy") [138, 145, 146, 148]. Pour notre part, après avoir observé l'effet accidentellement dans notre expérience sur l'effet Autler-Townes [134], nous nous sommes intéressés à la biréfringence et au dichroïsme provoqués dans une vapeur atomique par un rayonnement laser quasi-résonnant polarisé linéairement et aux résonances sans effet Doppler auxquelles ces phénomènes donnent lieu dans les systèmes à 2 et à 3 niveaux.

D'un point de vue macroscopique et phénoménologique, on peut considérer l'ensemble constitué par le système atomique en interaction

avec le faisceau laser intense polarisé linéairement (laser "pompe") comme un milieu optique anisotrope, le champ électrique du laser imposant en fait sa symétrie au milieu optique (figure 67). Un faisceau laser "sonde" peu intense et se propageant selon la même direction que le faisceau pompe verra donc des coefficients d'absorption et des indices de réfraction différents selon que sa direction de polarisation est parallèle ou est perpendiculaire à celle du laser intense. Ces anisotropies de l'absorption (dichroïsme  $\Delta\alpha = \alpha_{\parallel} - \alpha_{\perp}$ ) et de la dispersion (biréfringence  $\Delta n = n_{\parallel} - n_{\perp}$ ) ne se produiront pour le faisceau sonde que lorsqu'il interagira avec les mêmes atomes que le faisceau pompe, c'est-à-dire si le laser sonde est résonnant avec la même transition que le laser pompe, ou avec une transition ayant un niveau commun, et si les deux lasers sélectionnent la même classe de vitesse longitudinale. La discussion que nous venons d'esquisser, qui suppose une réponse linéaire du système par rapport au faisceau sonde, permet donc de prévoir l'existence de résonances sans effet Doppler pour  $\Delta\alpha$  et pour  $\Delta n$  quand on fait varier la fréquence du laser sonde.

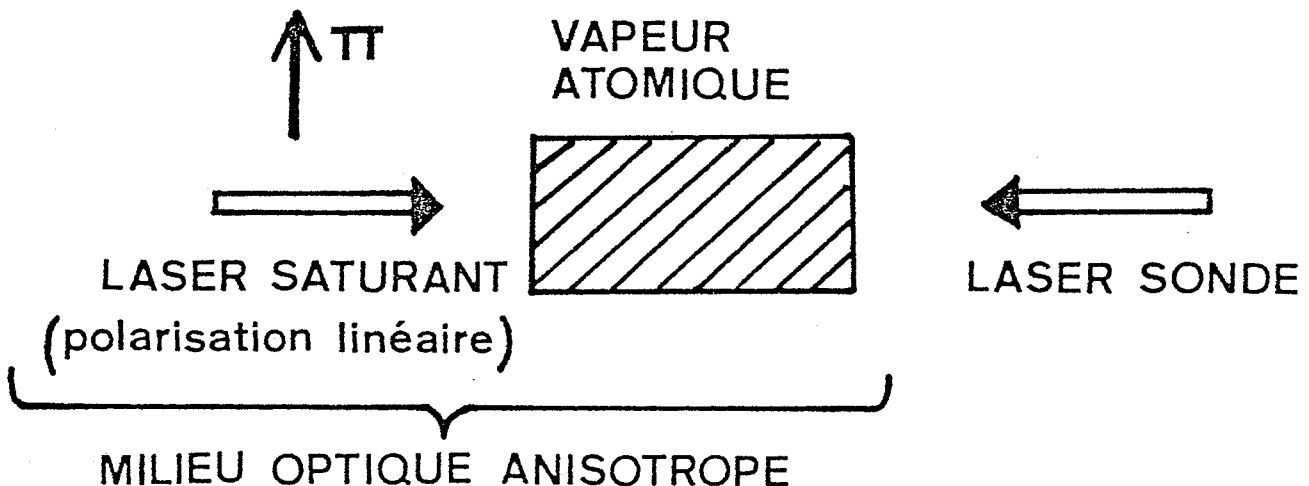


Figure 67 : Principe de l'expérience permettant d'étudier l'anisotropie induite par le laser pompe.



On peut considérer les phénomènes d'un autre point de vue et faire ressortir que le laser saturant polarisé linéairement induit des cohérences dans le système atomique dégénéré (cohérences optiques et cohérences Zeeman) et crée ainsi une polarisation macroscopique anisotrope dans le milieu atomique ; c'est à cette polarisation anisotrope que le faisceau sonde est sensible. Le lien entre ces expériences d'anisotropie induite par laser et certaines expériences de pompage optique utilisant des lasers monomodes [167, 168] est donc très étroit mais nous ne discuterons pas les phénomènes de ce point de vue par la suite. Dans le cas où le faisceau sonde est polarisé circulairement, le milieu optique présentera du dichroïsme et de la biréfringence circulaire. Si le faisceau sonde est polarisé linéairement avant le milieu ainsi saturé, sa polarisation deviendra elliptique après traversée de ce milieu anisotrope ; à travers un polariseur croisé situé sur le faisceau sonde après la région d'interaction, on aura de la lumière transmise seulement aux endroits des résonances. Cette méthode de détection sur "fond noir" a été tout d'abord utilisée en spectroscopie Raman [136] puis a été adaptée par Hänsch à la spectroscopie sans effet Doppler [138].

Pour observer les résonances sur  $\Delta n$  et  $\Delta \alpha$  (dichroïsme et biréfringence linéaire) nous avons mis en oeuvre différentes expériences dans le néon en utilisant des lasers à colorant monomode et des montages expérimentaux du type absorption saturée (systèmes à 2 niveaux) ou A.L.N. (systèmes à 3 niveaux). Le laser sonde est le plus souvent polarisé circulairement et, après la zone d'interaction, les changements de l'état de polarisation de ce laser sont observés à travers un analyseur linéaire (montage d'interférences en lumière polarisée pour étudier les milieux anisotropes) (figure 68). Dans un premier chapitre, nous discuterons le principe des expériences permettant d'observer le dichroïsme et la biréfringence ; nous présenterons ensuite les différents montages expérimentaux utilisés avant de montrer les courbes expérimentales et de discuter nos observations expérimentales.

## I. Principe des expériences : interférences en lumière polarisée.

Pour étudier notre milieu anisotrope particulier nous utilisons un montage expérimental classique permettant d'observer des interférences en lumière polarisée [151-153]. Ce montage est schématiquement représenté sur la figure 68 : le faisceau sonde, polarisé elliptiquement en général, traverse le milieu anisotrope, puis son état de polarisation est analysé par un polariseur linéaire. Les composantes du champ électrique parallèles et perpendiculaires à la direction privilégiée  $\pi$  (direction de polarisation du laser pompe) sont atténuées et sont déphasées l'une par rapport à l'autre au cours de la propagation dans le milieu anisotrope ; elles sont ensuite recombinaées sur l'analyseur linéaire A. On observe l'intensité  $I$  transmise à travers l'analyseur A qui fait un angle  $\beta$  avec la direction  $\pi$ .

Les principales notations sont indiquées sur la figure 68.  $\alpha_{\parallel}$  (resp.  $\alpha_{\perp}$ ) et  $n_{\parallel}$  (resp.  $n_{\perp}$ ) sont respectivement le coefficient d'absorption et l'indice de réfraction pour un faisceau sonde polarisé rectilignement et parallèlement (resp. perpendiculairement) à la direction  $\pi$  ; si  $\alpha_{\parallel} \neq \alpha_{\perp}$  et  $n_{\parallel} \neq n_{\perp}$ , seules les vibrations lumineuses polarisées rectilignement parallèlement et perpendiculairement à la direction  $\pi$  seront transmises sans déformation. Dans notre cas particulier d'anisotropie induite par un laser polarisé linéairement, on ne peut définir ces indices et ces coefficients d'absorption que, d'une part, parce que l'on tient compte des symétries du problème (direction de propagation du faisceau sonde parallèle à celle du faisceau saturant, direction privilégiée  $\pi$ ) et que, d'autre part, parce qu'on suppose que la réponse du système (vapeur atomique + laser pompe) est linéaire par rapport au faisceau sonde. Ce faisceau sonde a une polarisation elliptique et on désigne par  $\theta$  le déphasage entre les composantes  $E_{\perp}$  et  $E_{\parallel}$  du champ électrique (pour  $\theta=0$  on a une polarisation linéaire et pour  $|\theta| = \pi/2$ ,  $E_{\parallel} = E_{\perp}$  on a une polarisation circulaire). Ce déphasage  $\theta$  peut être également introduit juste avant l'analyseur A, c'est-à-dire après le milieu optique anisotrope.

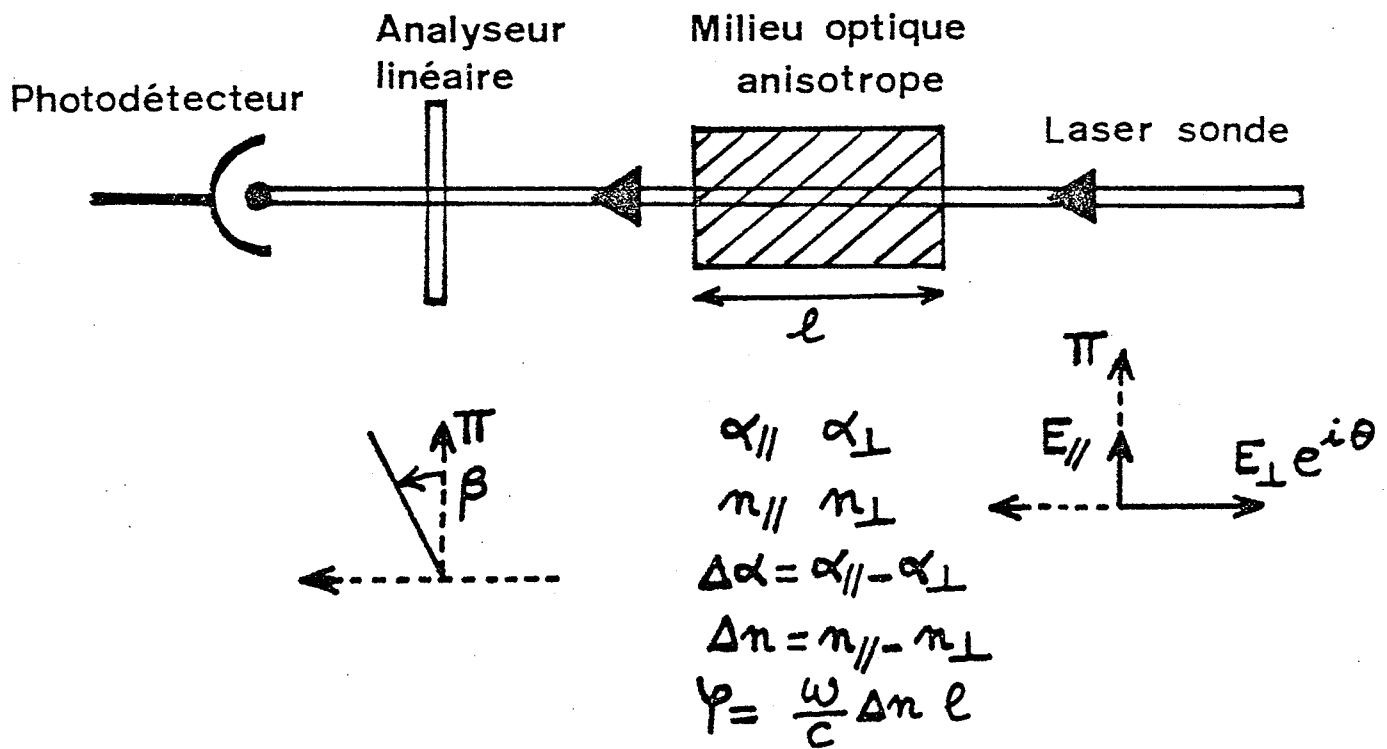
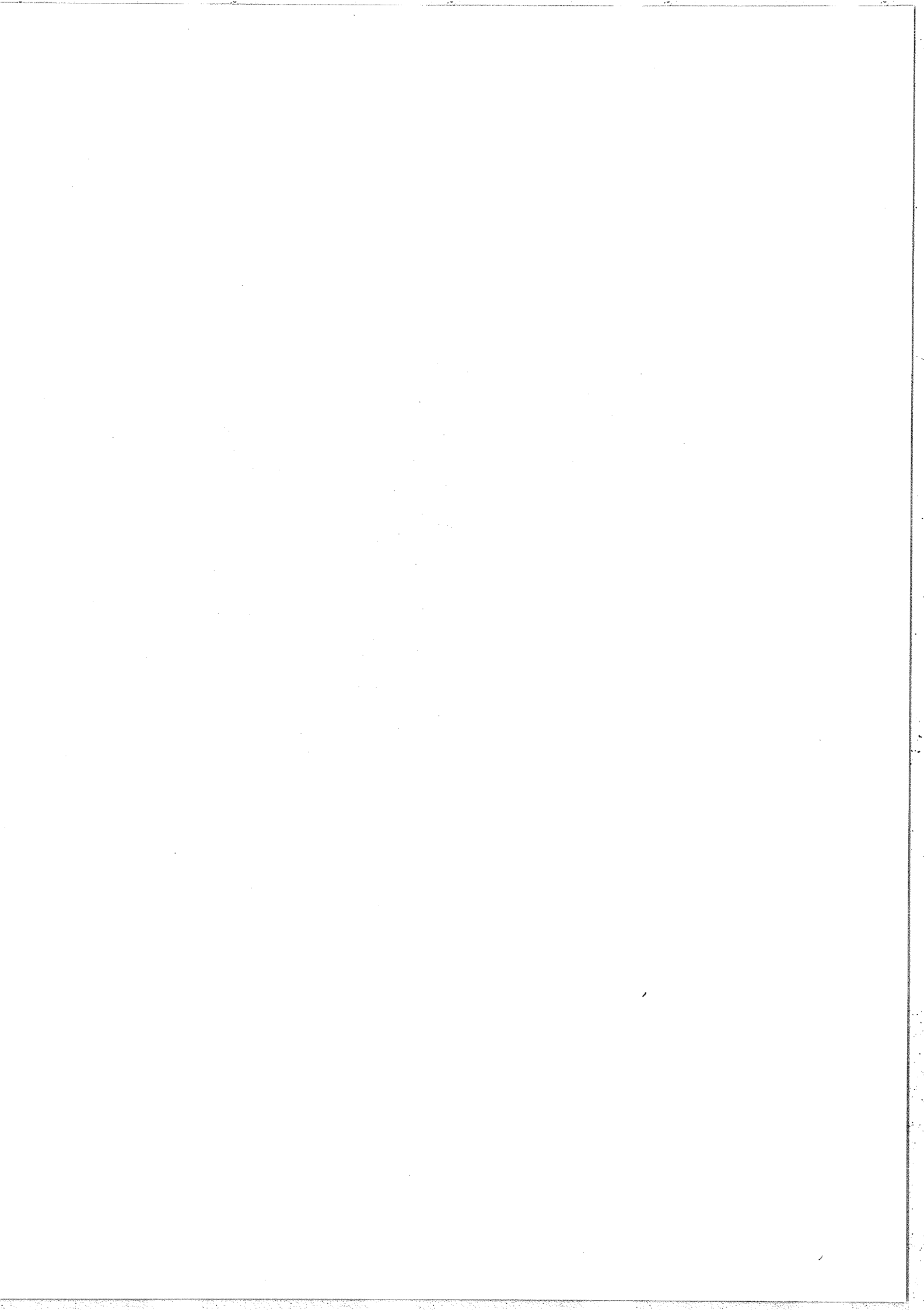


Figure 68 : Principe de l'expérience permettant d'étudier le milieu optique anisotrope.



Les amplitudes complexes des projections du champ électrique juste avant l'analyseur A s'écrivent en tenant compte de la propagation à travers le milieu anisotrope :

$$\begin{aligned} E'_{\parallel} &= E_{\parallel} e^{-\alpha_{\parallel} \ell/2} \\ E'_{\perp} &= E_{\perp} e^{-\alpha_{\perp} \ell/2} e^{i(\theta+\varphi)} \end{aligned}$$

Après l'analyseur linéaire A, l'amplitude complexe du champ électrique est donc :

$$E = E_{\parallel} e^{-\alpha_{\parallel} \ell/2} \cos \beta + E_{\perp} e^{-\alpha_{\perp} \ell/2} e^{i(\theta+\varphi)} \sin \beta$$

L'intensité correspondante reçue par le photodétecteur dépend du déphasage  $\varphi$  et s'écrit :

$$\begin{aligned} I(\beta) &= I_{\parallel} e^{-\alpha_{\parallel} \ell} \cos^2 \beta + I_{\perp} e^{-\alpha_{\perp} \ell} \sin^2 \beta \\ &\quad + \sqrt{I_{\parallel} I_{\perp}} e^{-(\alpha_{\parallel} + \alpha_{\perp})\ell/2} \cos(\theta+\varphi) \sin 2\beta \end{aligned} \quad (40)$$

Dans le cas d'un milieu optiquement mince, c'est-à-dire si  $\alpha_{\parallel} \ell, \alpha_{\perp} \ell \ll 1$  et  $\varphi \ll 2\pi$  ( $\Delta n \ell/\lambda \ll 1$ ) l'équation (40) devient :

$$\begin{aligned} I(\beta) - I^0(\beta) &= -I_{\parallel} \alpha_{\parallel} \ell \cos^2 \beta - I_{\perp} \alpha_{\perp} \ell \sin^2 \beta \\ &\quad - \sqrt{I_{\parallel} I_{\perp}} \left\{ \left( \frac{\alpha_{\parallel} + \alpha_{\perp}}{2} \right) \ell \cos \theta + \varphi \sin \theta \right\} \sin 2\beta \end{aligned} \quad (41)$$

avec  $I^0(\beta) = I_{\parallel} \cos^2 \beta + I_{\perp} \sin^2 \beta + \sqrt{I_{\parallel} I_{\perp}} \cos \theta \sin 2\beta$

$I^0(\beta)$  représente l'intensité transmise à travers l'analyseur A quand le milieu optique ne présente ni absorption ni biréfringence.

On peut remarquer (équation (41)) que pour  $\theta=0$  (polarisation linéaire du faisceau sonde)  $I(\beta)$  ne contient pas de terme (du premier ordre) en  $\varphi$ , l'expérience n'est alors pas sensible à la biréfringence ; par contre pour  $\theta = \pi/2$  le terme de biréfringence est maximum. En général  $I(\beta)$  dépend à la fois de l'absorption et de la biréfringence ; néanmoins dans le cas particulier où  $\theta = \pi/2$ , la quantité  $\Delta(\beta) = I(\beta) - I(-\beta)$

ne contient plus de termes correspondant à l'absorption et permet d'étudier directement la biréfringence du milieu. Quel que soit  $\theta$ ,  $(I(0) - I^{\circ}(0))$  permet de mesurer le coefficient d'absorption  $\alpha_{\parallel}$  et  $(I(90^{\circ}) - I^{\circ}(90^{\circ}))$  permet de mesurer le coefficient d'absorption  $\alpha_{\perp}$ .

Dans le cas particulier d'une polarisation circulaire ( $\theta = \pi/2$ ,  $I_{\parallel} = I_{\perp} = \frac{I}{2}$ ) on obtient pour l'intensité sur le photodétecteur :

$$I_c(\beta) - I_c^{\circ} = \frac{-I}{2} \left[ \Delta\alpha \frac{\ell}{2} \cos 2\beta + \frac{\omega}{c} \Delta n \ell \sin 2\beta \right] \quad (42)$$

$$I_c^{\circ} = \frac{I}{2} \left( 1 - \frac{\alpha_{\parallel} + \alpha_{\perp}}{2} \ell \right) ; \quad \Delta\alpha = \alpha_{\parallel} - \alpha_{\perp} ; \quad \Delta n = n_{\parallel} - n_{\perp}$$

$I_c^{\circ}$  est dans ce cas l'intensité lumineuse transmise à travers l'analyseur A quand le milieu étudié ne présente ni dichroïsme ni biréfringence ( $\alpha_{\parallel} = \alpha_{\perp} = \alpha_0$  ;  $\varphi = \frac{\omega}{c} \Delta n \ell = 0$  ;  $I_c^{\circ} = \frac{I}{2} (1 - \alpha_0 \ell)$ ).

Un autre cas particulier à considérer est celui d'un faisceau sonde polarisé linéairement à  $45^{\circ}$  de la direction  $\pi$  ( $\theta=0$ ,  $I_{\parallel} = I_{\perp}$ ) ; l'intensité reçue sur le photodétecteur s'écrit alors :

$$I_L(\beta) - I_L = \frac{-I}{2} \left\{ \Delta\alpha \frac{\ell}{2} \cos 2\beta - \left( 1 - \frac{\alpha_{\parallel} + \alpha_{\perp}}{2} \ell \right) \sin 2\beta \right\} \quad (43)$$

$I_L = \frac{I}{2} \left( 1 - \frac{\alpha_{\parallel} + \alpha_{\perp}}{2} \ell \right)$  ; en l'absence de dichroïsme ( $\alpha_{\parallel} = \alpha_{\perp} = \alpha_0$ ) l'intensité reçue par le photodétecteur est :

$$I_L^{\circ} = I_L (1 + \sin 2\beta) = I (1 - \alpha_0 \ell) \left( \cos \left( \frac{\pi}{4} - \beta \right) \right)^2 .$$

Nous pouvons finalement obtenir des signaux de biréfringence pure avec la quantité :  $\Delta_1 = I_c(\beta) - I_c(-\beta) = -I \varphi \sin 2\beta$  (44)

et des signaux de pur dichroïsme avec les quantités :

$$\Delta_2 = I_c(0^{\circ}) - I_c(90^{\circ}) = -I \Delta\alpha \ell / 2 \quad (45)$$

et  $\Delta_3 = I_L(0^{\circ}) - I_L(90^{\circ}) = -I \Delta\alpha \ell / 2$  . (46)

## II. Montages expérimentaux.

### 1° - Montage utilisant un prisme biréfringent.

Les montage expérimentaux pour les expériences de biréfringence dans les systèmes à deux niveaux sont essentiellement les mêmes que ceux utilisés pour l'absorption saturée (figure 69) [4, 17, 78, 154], si ce

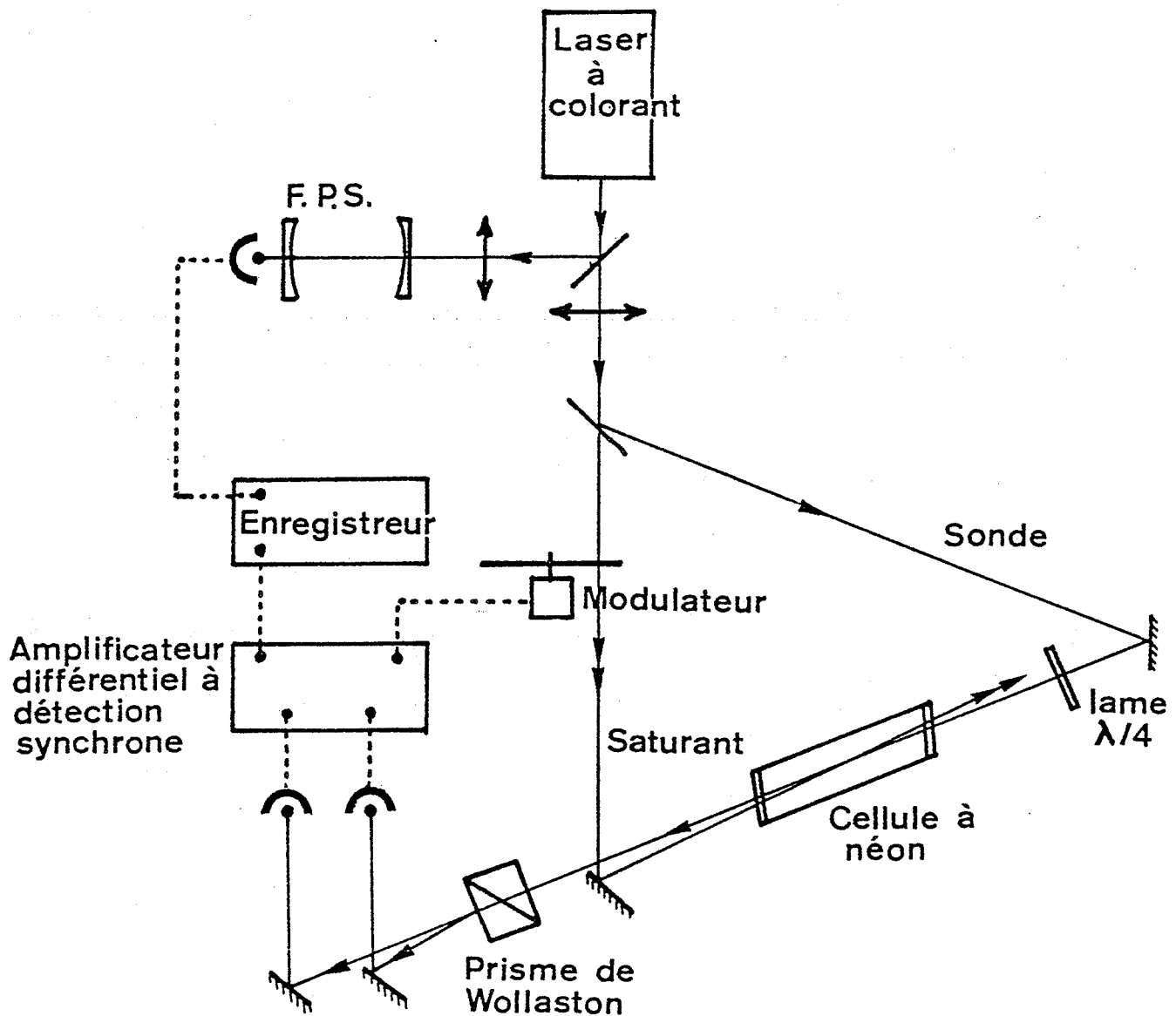


Figure 69 : Montage expérimental pour l'étude du dichroïsme et de la biréfringence induits par laser dans un système à deux niveaux.

n'est que le faisceau saturant est polarisé linéairement et que le faisceau sonde est soit polarisé circulairement, soit polarisé linéairement à  $45^\circ$  du saturant. Les deux faisceaux se croisent dans la cuve d'interaction en faisant un petit angle, ce qui permet de les séparer géométriquement. On module mécaniquement le faisceau saturant et on utilise un amplificateur à détection synchrone de manière à n'observer que le signal d'absorption saturée. Avec le montage de la figure 69, en envoyant simplement le faisceau sonde sur un détecteur juste après la cuve d'interaction, on peut observer les signaux d'absorption saturée habituels.

Pour observer la biréfringence et le dichroïsme nous devons analyser l'état de polarisation du faisceau sonde après la cuve suivant deux directions  $\beta_1$  et  $\beta_2$  ( $\beta_1 = -\beta_2$  ou  $\beta_1 = 0^\circ$  et  $\beta_2 = 90^\circ$  ;  $\beta$  désignant l'angle que fait l'analyseur linéaire avec la direction de polarisation  $\pi$  du laser saturant) et faire la différence des signaux correspondants (équations (44-46)). Dans un premier temps, nous avons placé une lame séparatrice sur le faisceau sonde et nous avons envoyé chacun des deux faisceaux ainsi obtenus sur un détecteur en passant auparavant à travers un polariseur ; notre première observation de la biréfringence dans un système à trois niveaux a été réalisée de cette façon [140]. Ce montage présente l'inconvénient d'introduire des dépolarisations (au niveau de la lame séparatrice) mal contrôlées. Nous avons donc cherché à obtenir à la fois l'effet de séparation géométrique en deux faisceaux et d'analyse de la polarisation selon deux directions à l'aide d'un prisme biréfringent (prisme de Wollaston). Pour une polarisation incidente quelconque, un tel prisme donne deux faisceaux séparés géométriquement dont la polarisation est respectivement parallèle et perpendiculaire à l'axe optique du prisme d'entrée (figure 70) et correspondant donc à la décomposition selon ces deux directions du champ électrique de l'onde incidente (référence [151], p. 501). Un tel prisme permet donc d'analyser simultanément la polarisation de la lumière selon deux directions perpendiculaires  $\beta$  et  $\beta + \pi/2$  et de séparer géométriquement les faisceaux correspondants.



Nous avons besoin d'analyser la polarisation du faisceau sonde simultanément pour  $0^\circ$  et  $90^\circ$  d'une part (dichroïsme :  $\Delta_2, \Delta_3$ ) et simultanément pour  $+\beta$  et  $-\beta$  (biréfringence :  $\Delta_1$ ) et, dans ce dernier cas, le maximum du signal est obtenu pour  $\beta = 45^\circ$  (équation (44)) ; dans ces conditions le prisme biréfringent répond parfaitement à notre besoin.

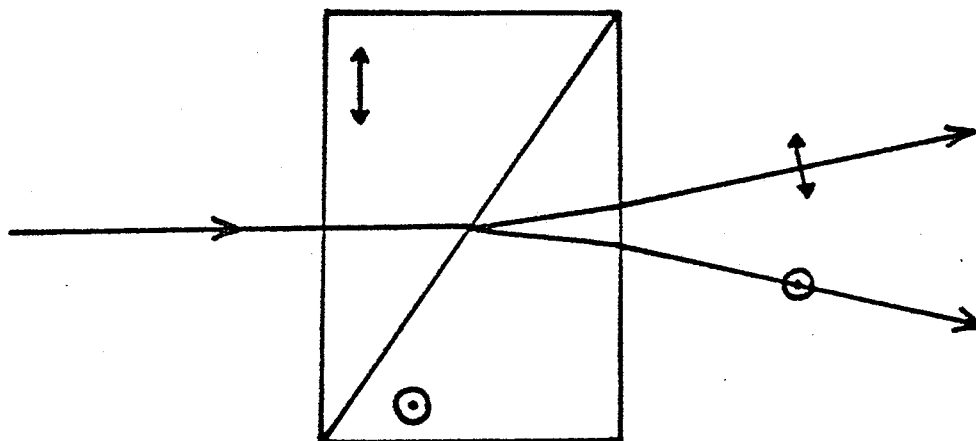


Figure 70 : Analyse des polarisations et séparation des faisceaux par un prisme de Wollaston.

Le montage expérimental est donc le suivant (figure 69) : la polarisation du faisceau sonde est analysée, après la zone d'interaction, par le prisme biréfringent convenablement orienté ; les deux faisceaux sortant du prisme sont envoyés sur deux photodiodes identiques et les signaux correspondants sont amplifiés par un amplificateur différentiel. On équilibre les signaux continus donnés par les deux voies en l'absence du laser saturant. Ce dispositif permet d'enregistrer directement selon le cas (polarisation du sonde, orientation du Wollaston) des quantités telles que  $\Delta_1$ ,  $\Delta_2$  et  $\Delta_3$  et d'obtenir ainsi des signaux de pure biréfringence ou de pur dichroïsme.

Les autres éléments du montage expérimental sont semblables à ceux utilisés précédemment (§.B.II.) : la cellule à décharge (diamètre 1,5 cm, longueur de décharge 5 cm, courant de décharge  $i \approx 5$  mA) est remplie de  $^{20}\text{Ne}$  ( $p \approx 0,2$  torr) ; le laser à colorant est un laser commercial (SP580) et on utilise un atténuateur pour obtenir une densité d'énergie de quelques  $\text{mW/mm}^2$  au niveau de la zone d'interaction ; on utilise le FP sphérique de 1 m de long pour étalonner les balayages du laser.

Pour l'étude du dichroïsme et de la biréfringence dans un système à trois niveaux, le faisceau sonde est celui d'un deuxième laser à colorant (laser Liberman-Pinard + sigmamètre) et le reste du montage n'est pas modifié si ce n'est que nous utilisons dans ce cas une configuration où les deux faisceaux laser se propagent dans le même sens (en faisant un petit angle), ce cas est plus favorable au point de vue largeur de raie pour les systèmes en V ou en V renversé que nous avons étudiés (voir §.B.I.2°).

## 2° - Montage utilisant un polariseur tournant.

Le montage précédent permet d'observer soit le dichroïsme, soit la biréfringence et pour passer de l'un à l'autre il faut tourner le Wollaston en contrôlant que les réglages (équilibrage des deux voies) ne sont pas modifiés dans cette opération. Nous allons maintenant décrire un autre montage expérimental qui permet d'observer simultanément les 2 courbes de résonance ; ce montage utilise un polariseur tournant pour analyser l'état de polarisation du faisceau sonde après la traversée du milieu anisotrope.

Plaçons-nous dans le cas d'un faisceau sonde polarisé circulairement et réécrivons l'expression obtenue pour l'intensité transmise à travers l'analyseur (équation (42)) :

$$I_c(\beta) - I_c^0 = \frac{-I}{2} \left[ \Delta\alpha \frac{\ell}{2} \cos 2\beta + \frac{\omega}{c} \Delta n \ell \sin 2\beta \right] .$$

Si on utilise un analyseur A qui tourne dans son plan à la vitesse angulaire  $\Omega$  ( $\beta = \Omega t$ ), la lumière reçue par le photodétecteur sera modulée à la fréquence  $2\Omega$  si le milieu optique traversé par le faisceau sonde présente du dichroïsme ou de la biréfringence. L'amplitude de la modulation à  $2\Omega$  dépend à la fois du dichroïsme  $\Delta\alpha$  et de la biréfringence  $\Delta n$  mais les deux contributions correspondantes sont en quadrature de phase, ce qui permet de les séparer facilement en utilisant une détection sensible à la phase.

Le principe du montage est indiqué sur la figure 71 : après la région d'interaction le faisceau sonde traverse le polariseur tournant avant d'éclairer le photodétecteur. Une turbine à air comprimé entraîne le polariseur dans une rotation à une fréquence  $\nu = \Omega/2\pi$  voisine de 100 Hz ; grâce à un disque à secteurs éclairé et à une photodiode on obtient un signal de référence à la fréquence  $2\nu$  synchrone de la rotation. Le signal donné par le photodétecteur est envoyé simultanément

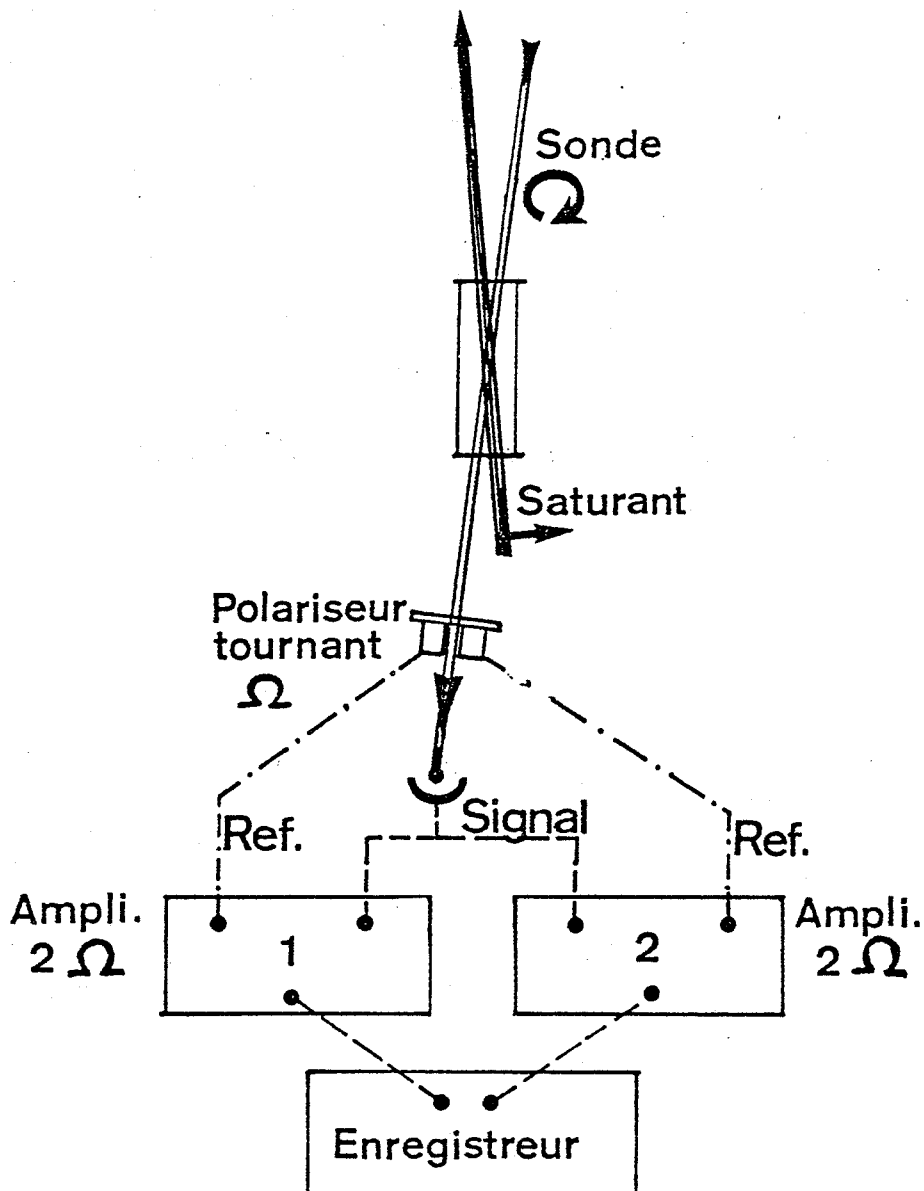


Figure 71 : Montage expérimental pour l'observation simultanée du dichroïsme et de la biréfringence.

dans deux amplificateurs à détection synchrone identiques et travaillant à la fréquence  $2\nu$ . Les réglages se font de la manière suivante : on ajuste la polarisation du laser sonde (en orientant la lame  $\lambda/4$ ) pour n'obtenir aucun signal à  $2\nu$  en l'absence du laser pompe ; en présence du laser pompe on règle la phase de l'une des détections synchrone pour obtenir une courbe de résonance d'absorption symétrique (dichroïsme) ; on règle finalement la phase de la deuxième détection synchrone en quadrature avec celle de la première pour obtenir la courbe de dispersion (biréfringence). On peut ainsi obtenir les courbes de dichroïsme et de biréfringence simultanément et avec la même échelle (\*) ce qui peut permettre d'étudier les relations existant entre ces deux grandeurs (partie imaginaire et partie réelle de la susceptibilité).

### III. Observation du dichroïsme et de la biréfringence induits par laser.

#### 1° - Systèmes à deux niveaux.

Nous nous intéressons à un gaz d'atomes à deux niveaux soumis à l'action d'un faisceau laser intense quasi-résonnant (faisceau pompe ou saturant) et d'un faisceau laser faible (faisceau sonde) de même fréquence se propageant en sens inverse (figure 72a). Le faisceau intense, de fréquence  $\omega$ , interagit avec les atomes de vitesse longitudinale  $v$  telle que :  $\omega (1 - \frac{v}{c}) = \omega_1$  ; le faisceau sonde se propageant en sens inverse "voit" les atomes de vitesse  $v'$  telle que :  $\omega (1 + \frac{v'}{c}) = \omega_1$ . Si  $v = v'$  (ce qui entraîne  $\omega = \omega'$  et  $v = v' = 0$ ) on observe une résonance dont la largeur spectrale est déterminée par la largeur homogène

---

(\*) Nous avons vérifié expérimentalement que le gain était le même sur les deux voies signal.

de la transition (largeur naturelle + effets de saturation + effets de pression).

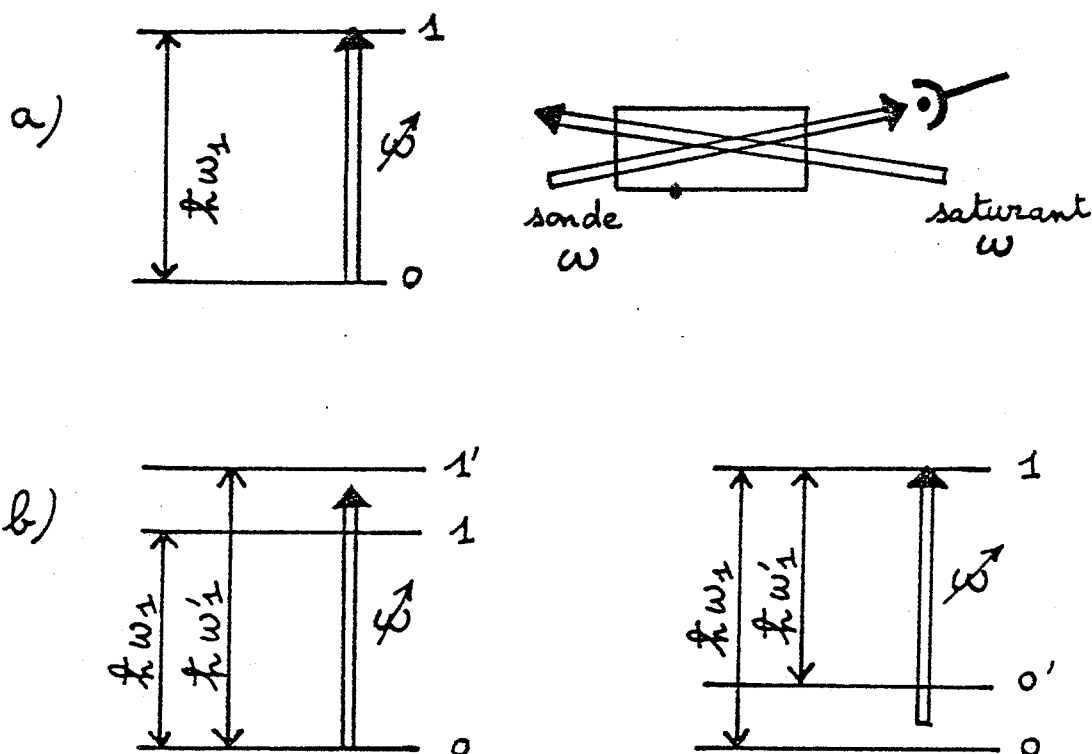


Figure 72 : Absorption saturée

- a) schéma des niveaux et du montage expérimental,  
 b) schéma de niveaux dans le cas d'une structure.

De nombreuses expériences utilisant cette technique d'absorption saturée ont été réalisées (mesure de structures sub-Doppler, études de collisions, stabilisation de lasers en fréquence), mais très peu de travaux ont été consacrés à la dispersion saturée qui doit accompagner cette absorption saturée [155, 156]. Il est, d'autre part, bien connu que les signaux d'absorption saturée dépendent de la polarisation relative du saturant et du sonde [157, 158] et on attend un comportement analogue pour la dispersion saturée. Dans la mesure où on peut considérer que la réponse du système (gaz d'atomes + laser saturant polarisé linéairement) est linéaire par rapport au faisceau sonde, cette dépendance vis-à-vis de la polarisation sonde peut être décrite comme du dichroïsme (pour l'absorption) et comme de la biréfringence (pour la

dispersion) donnant des résonances non affectées par l'effet Doppler. Les coefficients d'absorption  $\alpha_{\parallel}$  et  $\alpha_{\perp}$  et les indices de réfraction  $n_{\parallel}$  et  $n_{\perp}$  du §.D.II. correspondent alors à l'absorption et à la dispersion saturée respectivement.

Rappelons que, dans une expérience récente, un montage du type absorption saturée a permis d'observer et d'utiliser le dichroïsme et la biréfringence circulaire induits par un laser saturant polarisé circulairement dans de l'hydrogène atomique ("polarization spectroscopy" [138]).

Selon les auteurs de cette expérience, la méthode utilisée, qui permet de travailler sur un "fond noir" (cf. introduction de ce chapitre), présente de grands avantages sur l'absorption saturée "classique" tant en ce qui concerne la sensibilité que le rapport signal/fond. La méthode que nous décrivons ici, qui conduit à effectuer une différence entre deux signaux d'absorption saturée classique, ne saurait prétendre à de tels avantages.

Avec un montage expérimental analogue à celui de la figure 69 utilisant une lame séparatrice et deux polariseurs, nous avons tout d'abord cherché à mettre en évidence la biréfringence induite par le faisceau saturant dans du néon [140]. La figure 73 montre l'évolution, pour un laser sonde polarisé circulairement, de l'intensité  $I(\beta)$  transmise à travers l'analyseur (grâce à la modulation du saturant et à l'amplificateur à détection synchrone on n'observe que la partie de  $I(\beta)$  modifiée par la présence du faisceau saturant). Pour  $\beta = 0^\circ$  (analyseur parallèle à la polarisation du faisceau saturant) on observe la courbe d'absorption saturée habituelle ; sur la figure 73 il s'agit de celle correspondant à la transition  $1s_4 \rightarrow 2p_3$  de Ne I ( $\lambda = 6074 \text{ \AA}$ ). Pour  $\beta \neq 0^\circ$  on obtient comme attendu (équations (41) et (42)) une superposition de courbes d'absorption et de dispersion, la contribution de la dispersion changeant de signe quand  $\beta$  devient  $-\beta$  (figure 73). Avec un faisceau sonde polarisé linéairement à  $45^\circ$  du saturant et une lame  $\lambda/4$  après la cuve (introduction du déphasage  $\theta = \pi/2$  (équations (40) et (41)) après la cuve et non pas avant), nous avons pu également observer des courbes semblables à celles de la figure 73 (mélange absorption

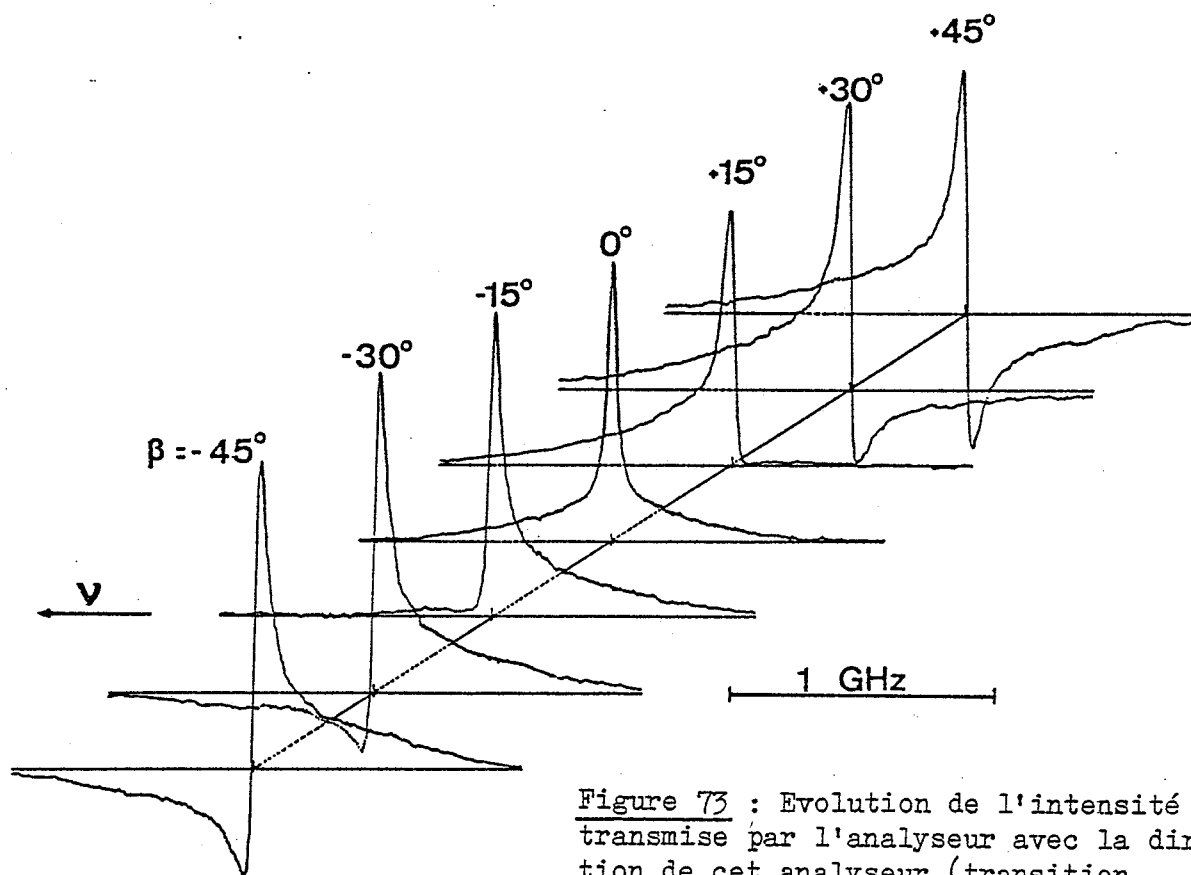


Figure 73 : Evolution de l'intensité  $I(\beta)$  transmise par l'analyseur avec la direction de cet analyseur (transition  $\lambda = 6074 \text{ \AA}$ ,  $1s_4 \rightarrow 2p_3$  de Ne I).

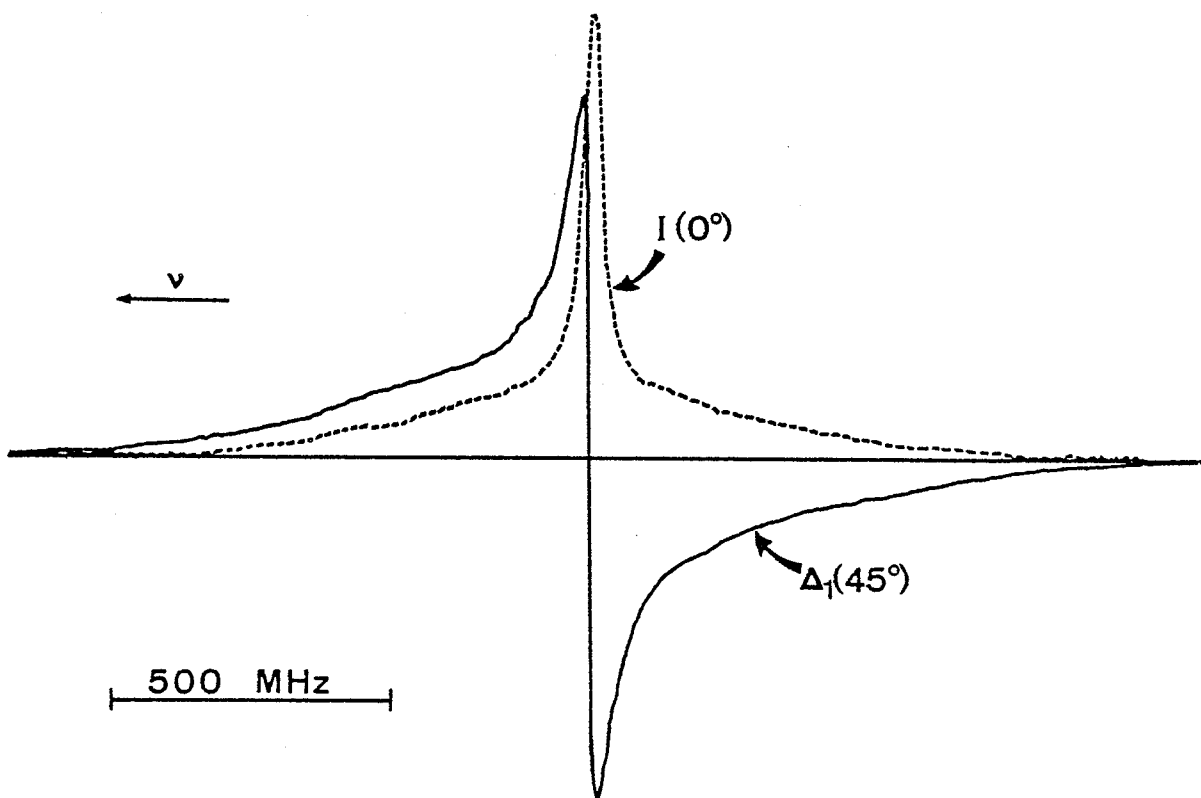
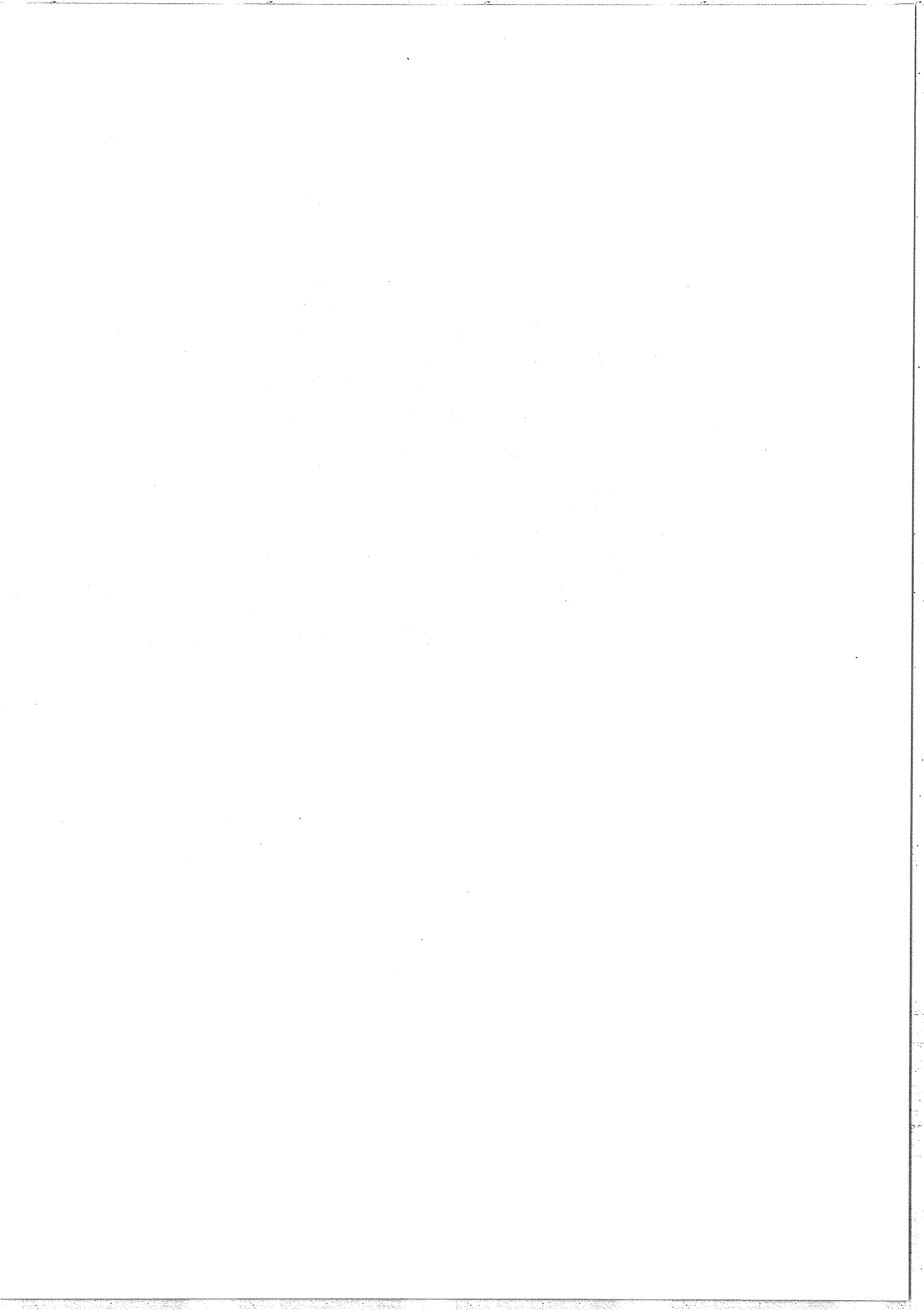


Figure 74 : Courbes d'absorption saturée et de biréfringence pour la raie  $\lambda = 6074 \text{ \AA}$  ( $1s_4 \rightarrow 2p_3$ ) de Ne I.





et dispersion). La figure 74 présente, outre la courbe d'absorption saturée  $I(0^\circ)$  précédente, la courbe des variations de  $\Delta_1(45^\circ) = I(45^\circ) - I(-45^\circ)$  obtenue expérimentalement comme nous l'avons expliqué au §.D.II.1°. En faisant varier la fréquence du laser au voisinage de la fréquence atomique, on obtient bien une courbe de dispersion correspondant à la biréfringence induite par le laser saturant.

La figure 75 montre, toujours pour la même raie du néon, les courbes obtenues avec un mélange enrichi en néon 21 ( $I=3/2$ ) et sur lesquelles on peut distinguer, outre les résonances dues aux isotopes pairs et celles données par les différentes composantes hyperfines (A, D et F), des résonances dites de "croisement" (B, C et E) situées au milieu de deux composantes hyperfines normales. Ces résonances proviennent de transitions ayant un niveau commun (niveau supérieur commun pour  $\lambda = 6074 \text{ \AA}$ ,  $1s_4 (J=1) \rightarrow 2p_3 (J=0)$ ) et correspondent à la situation suivante (figure 72b) : le faisceau saturant voit les atomes de vitesse

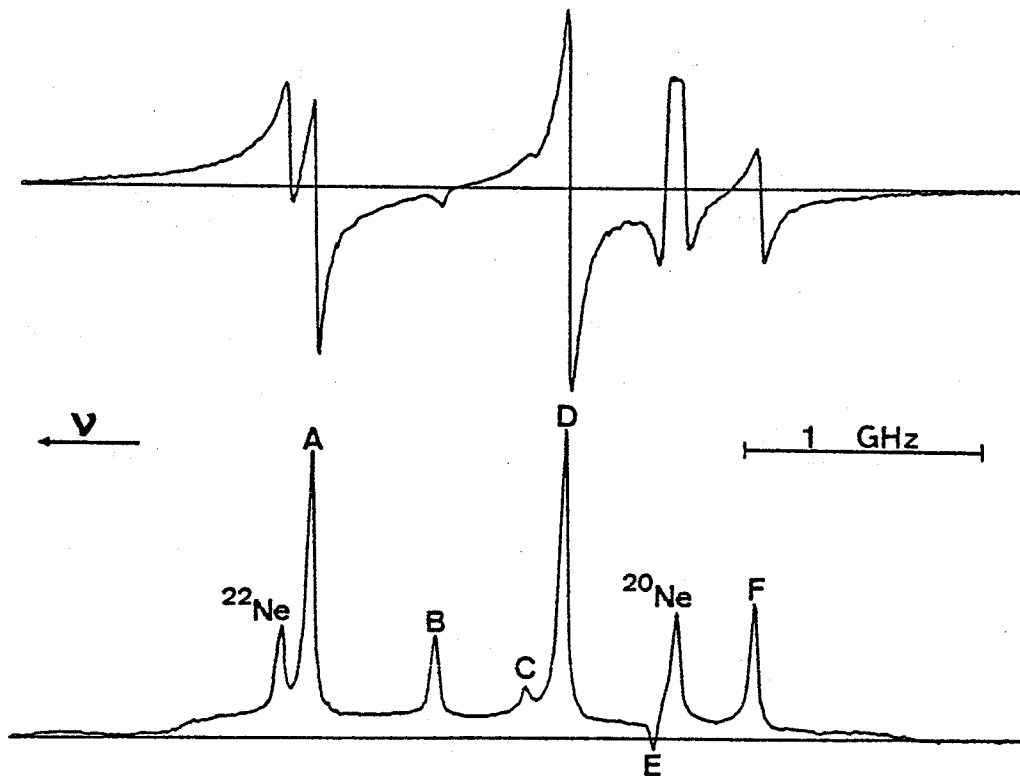


Figure 75 : Structure hyperfine de la raie  $\lambda = 6074 \text{ \AA}$  ( $1s_4 (J=1) \rightarrow 2p_3 (J=0)$ ) de  $^{21}\text{Ne}$  observée en absorption saturée et en biréfringence.

$v$  telle que  $\omega \left(1 - \frac{v}{c}\right) = \omega_1$  et le faisceau sonde voit les atomes de vitesse  $v'$  telle que  $\omega \left(1 + \frac{v'}{c}\right) = \omega'_1$ , pour  $v = v'$  on a une résonance dont la position est donnée par  $2\omega = \omega_1 + \omega'_1$ . L'amplitude et même parfois le signe de ces résonances parasites dépendent des constantes de relaxation des niveaux concernés [78a, 159, 160].

Sur la figure 75 on observe toutes ces résonances (résonances normales et résonances parasites) aussi bien sur la courbe de biréfringence que sur celle d'absorption saturée.

Avant de décrire une autre propriété intéressante de nos courbes de résonances, il faut signaler que dans ces expériences de mise en évidence nous avons également observé de la biréfringence (faible et donnant des résonances larges) pour la raie  $\lambda = 5852 \text{ \AA} (1s_2 \rightarrow 2p_1)$ .

Dans une étude préliminaire aux expériences que nous venons de décrire, nous avons observé les signaux d'absorption saturée pour les raies suivantes du néon :  $5852 \text{ \AA} (1s_2 \rightarrow 2p_1)$  ;  $5882 \text{ \AA} (1s_5 \rightarrow 2p_2)$  ;  $5945 \text{ \AA} (1s_5 \rightarrow 2p_4)$  ;  $5975 \text{ \AA} (1s_5 \rightarrow 2p_5)$  ;  $6030 \text{ \AA} (1s_4 \rightarrow 2p_2)$  ;  $6074 \text{ \AA} (1s_4 \rightarrow 2p_3)$  ;  $6096 \text{ \AA} (1s_4 \rightarrow 2p_4)$  ;  $6143 \text{ \AA} (1s_5 \rightarrow 2p_6)$  et  $6163 \text{ \AA} (1s_3 \rightarrow 2p_2)$ . La plupart de ces courbes d'absorption saturée (à l'exception de celles pour  $5852 \text{ \AA}$  et  $6074 \text{ \AA}$ ) se présentent sous la forme d'un pic étroit superposé à un fond important de grande largeur dû aux collisions (figure 76a). De tels profils sont maintenant bien connus en absorption saturée [89, 161] : le signal large provient d'une redistribution collisionnelle des atomes pompés par le laser saturant sur tout le profil Doppler (collisions changeant la vitesse, échange de métastabilité, emprisonnement de radiation). Des paramètres importants concernant les collisions, notamment les collisions qui changent la vitesse, ont pu être mesurés récemment dans notre laboratoire grâce à l'étude détaillée de tels profils dans le krypton [89].

En utilisant le montage expérimental avec prisme biréfringent (figure 69), nous avons enregistré les courbes de résonance pour le dichroïsme (figure 76b) et le biréfringence (figure 76c) induits par le laser saturant pour la transition à  $5882 \text{ \AA}$  du néon. On constate que la structure large n'existe pas sur ces dernières courbes, ce qui signifie que les collisions

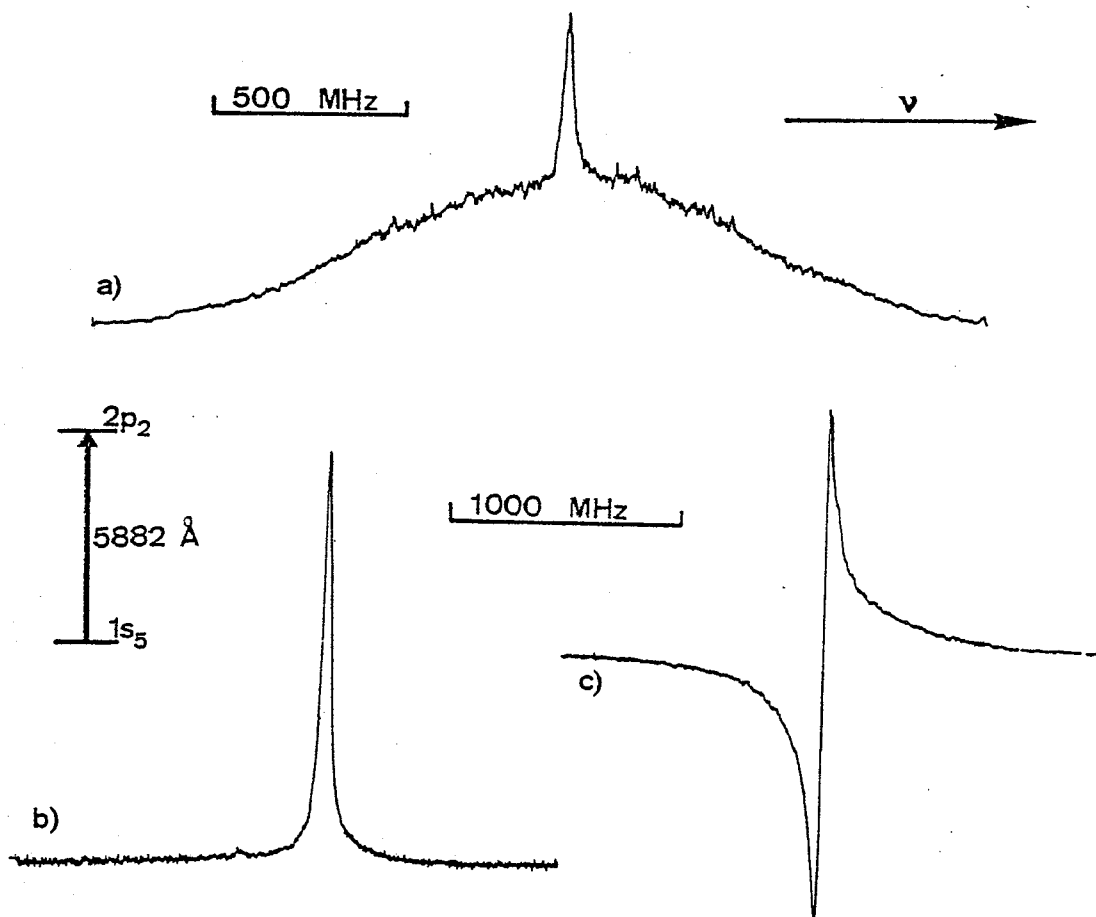


Figure 76 : Courbes d'absorption saturée ( $I(0^\circ)$ ) de dichroïsme ( $\Delta_2$ ) et de biréfringence ( $\Delta_1(45^\circ)$ ) pour la transition  $1s_5 \rightarrow 2p_2$  de Ne I ( $\lambda = 5882 \text{ \AA}$ )

qui produisent la redistribution des vitesses atomiques détruisent complètement (tout au moins à la précision et à la sensibilité de notre expérience) l'anisotropie initiale produite par le laser saturant. Un comportement analogue a été observé dans le cas des raies  $5945 \text{ \AA}$ ,  $6030 \text{ \AA}$  et  $6096 \text{ \AA}$  du néon.

Dans le cas de structures très serrées, les fonds larges peuvent être très gênants [52, 53] et les courbes de dichroïsme pourraient être employées pour améliorer la résolution. De plus, la méthode différentielle employée permet d'améliorer le rapport signal sur bruit en éliminant une partie des fluctuations d'intensité du laser (voir figures

77a et 77b). La figure 77 permet de comparer la structure hyperfine de la raie  $\lambda = 5882 \text{ \AA}$  obtenue en absorption saturée habituelle (figure 77a) et la courbe de dichroïsme correspondant (figure 77b) ; certaines composantes hyperfines ont disparu sur la deuxième courbe mais le fond n'y apparaît plus. Il nous semble que cette technique pourrait être particulièrement fructueuse dans le cas des déplacements isotopiques pour améliorer la séparation des différents pics de résonance [52, 53].



Figure 77 : Structure hyperfine de la transition  $1s_5 (J=2) \rightarrow 2p_2 (J=1)$  de  $^{21}\text{Ne}$  ( $I = 3/2$ )  
 A) absorption saturée (polarisation du faisceau sonde perpendiculaire à celle du faisceau saturant),  
 B) dichroïsme ( $\Delta_3$ ).

Nous avons mesuré la différence d'indice de réfraction  $\Delta n$  correspondant à l'amplitude totale de la courbe de dispersion. Pour cela, nous mesurons dans la même unité arbitraire la quantité  $\delta = |\Delta_{1\max} - \Delta_{1\min}| = 2I \varphi$  (cf. équation (44)) et l'intensité  $I$  du faisceau sonde ; cette mesure s'effectue à l'oscilloscope en mesurant, d'une part, l'amplitude du signal continu provenant d'une seule photodiode et, d'autre part, l'amplitude de la modulation sur la différence des signaux des deux photodiodes. Le déphasage maximum observé est dans ces conditions  $\varphi = \frac{\omega}{c} \Delta n \ell = \frac{\delta}{2I}$  ce qui permet de déduire de la mesure précédente la valeur de l'écart des indices au maximum de la courbe de dispersion. Pour une densité de puissance du laser saturant de quelques  $\text{mW/mm}^2$  on obtient typiquement pour  $\varphi$  une valeur de  $10^{-2}$  rad., ce qui correspond à une différence des indices de réfraction  $\Delta n \approx 2 \cdot 10^{-8}$ .

## 2° - Systèmes à trois niveaux.

Parmi les nombreux travaux théoriques [84, 85, 87, 150] et expérimentaux [67, 76, 90, 104, 133] concernant les effets liés à la polarisation des lasers et à la dégénérescence Zeeman des niveaux dans les systèmes à trois niveaux, peu sont consacrés aux effets de dispersion [87, 90, 133, 150]. Nos expériences montrant l'existence de la biréfringence induite par un laser polarisé dans un système à trois niveaux sont, à notre connaissance, les seules existant actuellement.

Pour mettre en évidence cette biréfringence, mais également le dichroïsme, nous utilisons un montage semblable à celui de la figure 69 mais dans lequel le faisceau sonde est produit par un 2ème laser à colorant et où les deux faisceaux laser se propagent dans le même sens (en faisant un petit angle comme dans l'expérience d'absorption saturée précédente).

Nous avons étudié des systèmes à trois niveaux faisant intervenir les transitions  $1s-2p$  du néon. Dans certains cas, la résonance se présente, comme nous l'avons déjà montré (§.B.II. figure 41) sous la forme d'un pic étroit superposé à une structure plus large due aux

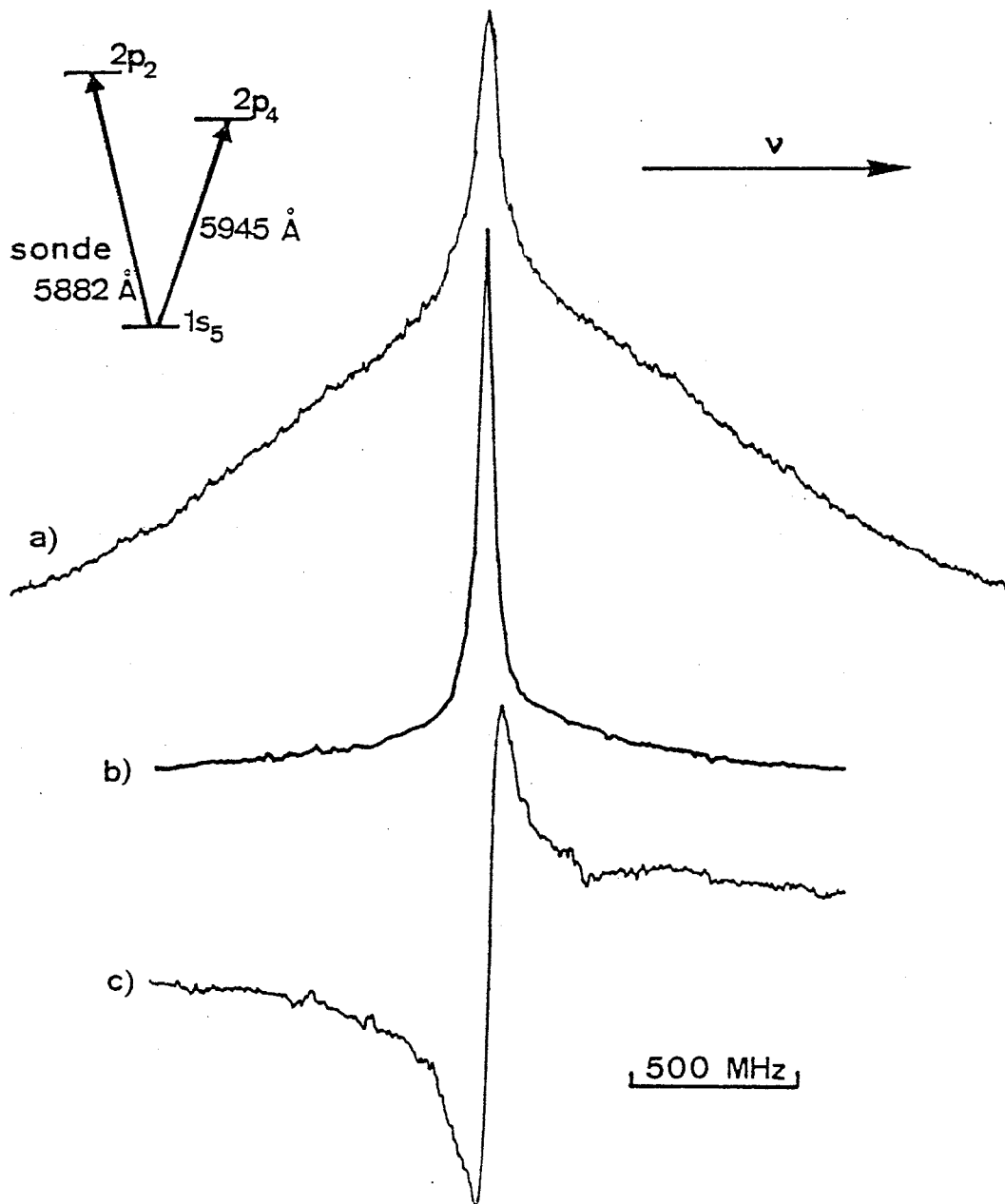


Figure 78 : Système à 3 niveaux  $2p_2 \leftarrow 1s_5 \rightarrow 2p_4$  de Ne I  
 a) courbe de résonance  ${}^2(\text{ALN})_5$  obtenue<sup>4</sup> avec un faisceau sonde polarisé linéairement dans la même direction que le saturant,  
 b) courbe de dichroïsme :  $\Delta_3$  ; le même spectre a été obtenu avec un laser sonde polarisé circulairement :  $\Delta_2$  ,  
 c) courbe de biréfringence :  $\Delta_1$  ( $45^\circ$ ).

collisions qui rethermalisent les vitesses des atomes pompés. On trouve un exemple de ce type de résonance sur la figure 78a ; dans ce cas particulier, le niveau commun aux deux transitions est le métastable  $1s_5$ , de très longue durée de vie. Les courbes de dichroïsme (figure 78b) et de biréfringence (figure 78c) correspondantes ne présentent pas de structure large et on pourrait reprendre à ce sujet la discussion du paragraphe précédent. On peut remarquer que la courbe de dichroïsme a été obtenue avec un faisceau saturant polarisé linéairement ( $\Delta_3$ , équation (46)) ; on ne risque pas d'obtenir, dans ce cas, de contributions de dispersion (cf. équation (41) avec  $\theta = 0$ ) même si les réglages optiques et électroniques ne sont pas parfaits.

Dans le cas illustré sur la figure 79 nous avons également observé expérimentalement une très grande différence dans la forme des courbes de dichroïsme (fig. 79c) et des courbes d'A.L.N. (fig. 79a,b). Nous avons essayé de mettre à profit la résonance très étroite de la courbe de dichroïsme pour mesurer directement la différence de déplacement isotopique des deux niveaux métastables de la configuration  $2p^5 3s$  de Ne I. Au premier ordre, l'effet isotopique de masse spécifique devrait être le même pour les 2 niveaux  $^3P_2$  et  $^3P_0$  de  $2p^5 3s$  [16, 55]. Un écart entre les déplacements isotopiques de masse spécifique de ces 2 niveaux constitue donc une démonstration de l'existence de contributions dépendant de  $J$  pour le déplacement spécifique de masse [55, 162, 163].

Soient  $\Delta T_1$  et  $\Delta T_2$  les déplacements isotopiques respectifs des transitions  $\lambda_1 = 5882 \text{ \AA}$  ( $1s_5 \rightarrow 2p_2$ ) et  $\lambda_2 = 6163 \text{ \AA}$  ( $1s_3 \rightarrow 2p_2$ ) pour le couple  $^{22}\text{Ne} - ^{20}\text{Ne}$ . L'écart des résonances A.L.N. obtenues en balayant le laser 2 (cf. §.B.I.) est :

$$\Delta\sigma = \Delta T_2 - \frac{\omega_2}{\omega_1} \Delta T_1 = (\Delta T_2 - \Delta T_1) + \left(1 - \frac{\omega_2}{\omega_1}\right) \Delta T_1 .$$

Dans le cas particulier considéré  $\left(1 - \frac{\omega_2}{\omega_1}\right) = 0,0457$  de sorte que, même si  $\Delta T_1$  n'est connu qu'avec une précision médiocre, on peut faire la correction  $\left(1 - \frac{\omega_2}{\omega_1}\right) \Delta T_1$  avec une précision suffisante et déduire de une mesure directe de  $(\Delta T_2 - \Delta T_1)$  qui représente l'écart des

déplacements isotopiques des deux niveaux  $^3P_0$  et  $^3P_1$  de  $2p^53s$ . Nous avons donc enregistré la courbe de dichroïsme avec un mélange d'isotopes 20 et 22 mais nous n'avons pas pu observer de différence significative avec la courbe obtenue en  $^{22}\text{Ne}$  pur. Nous avons observé une largeur de  $(0,73 \pm 0,03)\text{mK}$  avec le néon 22 pur et une largeur de  $(0,80 \pm 0,07)\text{mK}$  avec le mélange (50% - 50%) de  $^{20}\text{Ne}$  et  $^{22}\text{Ne}$ ; l'essentiel de la largeur de raie de  $^{22}\text{Ne}$  est dans ce cas dû au laser sonde (laser Liberman-Pinard).

Odintsov [13] a mesuré pour  $\Delta T_1$  et  $\Delta T_2$  les valeurs suivantes :  $\Delta T_1 = 58,0 \text{ mK}$ ;  $\Delta T_2 = 55,1 \text{ mK}$ . On a donc  $(\Delta T_2 - \Delta T_1) = -2,9 \text{ mK}$  et  $(1 - \frac{\omega_2}{\omega_1})\Delta T_2 = 2,65 \text{ mK}$ ; l'écart  $\Delta\sigma$  attendu entre les résonances des deux isotopes est donc  $-0,25 \text{ mK}$  ce qui est inférieur à la largeur de raie obtenue dans notre expérience. On peut tout de même observer que l'écart des déplacements isotopiques mesurés par Odintsov ne semble pas compatible avec notre observation sur la largeur de la résonance avec le mélange des deux isotopes; la valeur  $2,9 \text{ mK}$  est probablement légèrement trop grande.

### 3° - Observation simultanée du dichroïsme et de biréfringence ; relations de Kramers-Kronig.

En utilisant un faisceau sonde polarisé circulairement, un polariseur tournant après la zone d'interaction et deux amplificateurs à détection synchrone en quadrature (figure 80a), on peut enregistrer simultanément les courbes de dichroïsme et de biréfringence (cf. §.D.II.2°). Nous présentons ici quelques exemples d'enregistrements obtenus ainsi pour des systèmes à 3 niveaux (figures 80b et 81) et pour des systèmes à 2 niveaux (figures 82 et 83).

Comme nous l'avons déjà indiqué, l'intérêt d'une telle technique réside dans la possibilité d'obtenir les courbes de dichroïsme et de biréfringence simultanément et avec la même échelle, on peut espérer ainsi être dans une situation favorable pour comparer les deux types de résonances et essayer de relier les deux courbes l'une à l'autre.



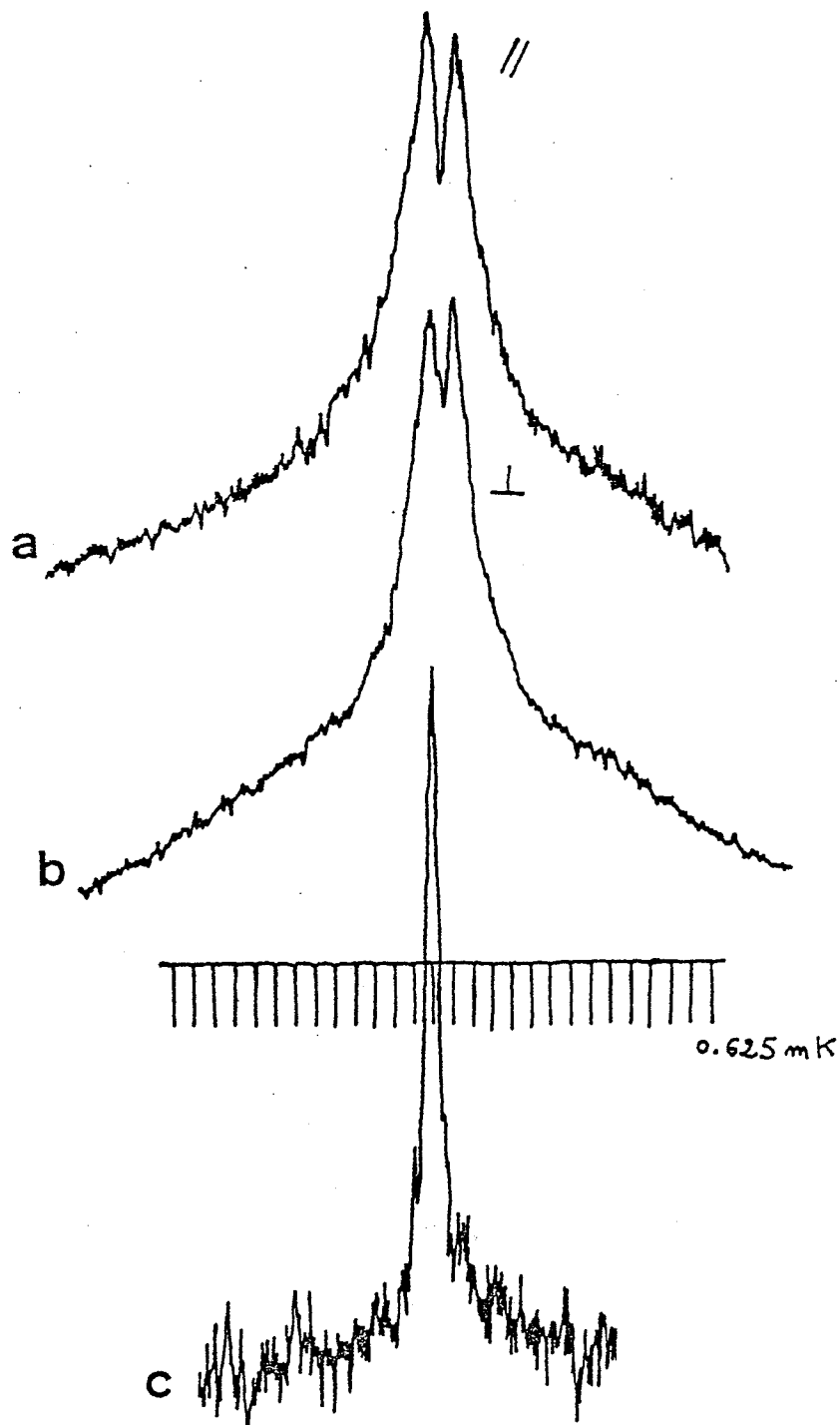
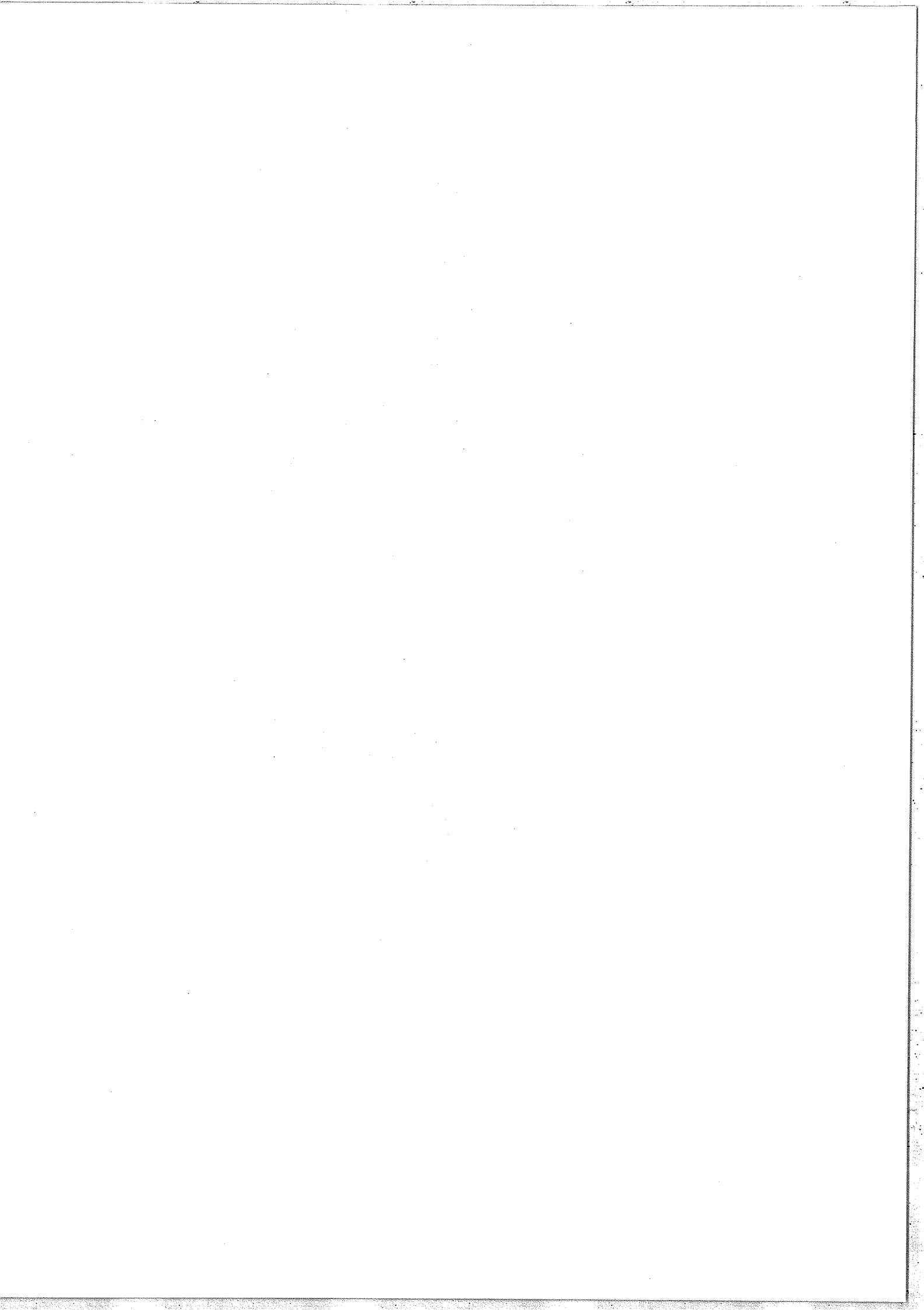


Figure 79 : Système à trois niveaux  $1s_5 \rightarrow 2p_2 \leftarrow 1s_3$  de Ne I .

- a) courbe A.L.N., polarisation sonde parallèle à celle du saturant,
- b) courbe A.L.N., polarisation sonde perpendiculaire à celle du saturant,
- c) courbe de dichroïsme.



Nous allons maintenant discuter brièvement la relation qui doit exister entre la courbe d'absorption et celle de dispersion. Le changement du coefficient d'absorption du sonde  $(\alpha_{\text{sat}} - \alpha_0) = \alpha'$  induit par le laser saturant polarisé linéairement et que l'on observe dans une expérience d'absorption saturée ou d'A.L.N., correspond à la partie imaginaire d'une susceptibilité complexe non linéaire (cf. [74] et formule (14) du Chapitre B par exemple) dont la partie réelle représente le changement d'indice de réfraction  $n' = (n_{\text{sat}} - n_0)$  associé. Ceci est bien sûr vrai également pour le changement du coefficient d'absorption  $\alpha'_{\parallel}$  (resp.  $\alpha'_{\perp}$ ) et d'indice de réfraction  $n'_{\parallel}$  (resp.  $n'_{\perp}$ ) vus par un faisceau sonde de polarisation parallèle (resp. perpendiculaire) à la polarisation du saturant.

De manière générale, une relation de dispersion (ou relation de Kramers-Kronig) relie les parties imaginaires et réelles de telles quantités dépendant de la fréquence pourvu que cette quantité satisfasse à quelques conditions très générales (linéarité de la réponse du milieu, invariance de la réponse par translation dans le temps, causalité, conditions d'intégrabilité) [164-166]. On peut alors écrire pour une telle quantité  $g(\omega)$  :

$$\left. \begin{aligned} \text{Re } g(\omega) &= \frac{1}{\pi} P \int_{-\infty}^{+\infty} \frac{\text{Im } g(\omega')}{\omega' - \omega} d\omega' \\ \text{Im } g(\omega) &= \frac{-1}{\pi} P \int_{-\infty}^{+\infty} \frac{\text{Re } g(\omega')}{\omega' - \omega} d\omega' \end{aligned} \right\} \quad (47)$$

Nous nous plaçons depuis le début de notre étude du dichroïsme et de la biréfringence dans un modèle où l'on considère la réponse linéaire par rapport au laser sonde du système : "gaz d'atomes + laser saturant polarisé linéairement" ; cette hypothèse de linéarité nous permet d'ailleurs de représenter cette réponse par des coefficients d'absorption  $\alpha'_{\parallel}$ ,  $\alpha'_{\perp}$  et par des indices  $n'_{\parallel}$ ,  $n'_{\perp}$ . Dans cette hypothèse, la condition de linéarité étant satisfaite, on pourra écrire des relations de dispersion entre les coefficients d'absorption  $\alpha'_{\parallel}$  (resp.  $\alpha'_{\perp}$ ) et les indices de réfraction correspondants  $n'_{\parallel}$  (resp.  $n'_{\perp}$ ). Nous pourrions écrire, en dernier ressort, cette relation de dispersion entre les quantités

accessibles à notre expérience, à savoir  $\Psi = \Delta\alpha \ell/2 = (\alpha'_{\parallel} - \alpha'_{\perp}) \ell/2$  et  $\varphi = \frac{\omega}{c} (n'_{\parallel} - n'_{\perp}) \ell$ , sous la forme :

$$\left. \begin{aligned} \varphi(\omega) &= \frac{1}{\pi} P \int_{-\infty}^{+\infty} \frac{\Psi(\omega')}{\omega' - \omega} d\omega' \\ \Psi(\omega) &= \frac{-1}{\pi} P \int_{-\infty}^{+\infty} \frac{\varphi(\omega')}{\omega' - \omega} d\omega' \end{aligned} \right\} \quad (48)$$

Pour une résonance de dichroïsme de forme Lorentzienne

$$\Psi = \frac{A}{1+x^2}, \quad x = \frac{\omega - \omega_0}{\Gamma}, \quad \text{le déphasage } \varphi \text{ sera ainsi donné par}$$

$$\varphi = -x \Psi = \frac{Ax}{1+x^2}. \quad \text{Dans ce cas l'amplitude totale de la courbe de}$$

biréfringence serait égale à celle de la courbe de dichroïsme. Ceci est très loin d'être vérifié dans le cas représenté sur la figure 81 ; nous avons en fait déjà vu précédemment que, même à faible saturation, les résonances données par les systèmes à trois niveaux ne sont en général pas Lorentziennes.

Après avoir apporté quelques améliorations à notre expérience (précision de l'échelle de fréquence, stabilisation en intensité et en fréquence des lasers), nous pensons être en mesure de vérifier si, dans nos conditions expérimentales, les relations de dispersion (équation (48)) entre  $\Psi$  et  $\varphi$  s'appliquent ou non. On devrait en particulier pouvoir calculer une courbe  $\varphi_{\text{calculée}}(\omega)$  à partir de  $\Psi_{\text{exp}}(\omega)$  et comparer ensuite  $\varphi_{\text{cal}}(\omega)$  et  $\varphi_{\text{exp}}(\omega)$  ; on devrait également pouvoir utiliser le même processus en échangeant les rôles de  $\varphi$  et  $\Psi$ .

Nous terminerons ce chapitre consacré à la mise en évidence expérimentale du dichroïsme et de la biréfringence induits par laser en insistant sur le fait que notre approche des phénomènes provenant de la polarisation des lasers et de la dégénérescence des niveaux est ici très phénoménologique et macroscopique. Nous n'avons pas besoin de connaître le détail de l'interaction pour prédire l'existence des anisotropies de coefficient d'absorption et d'indice et les observer.

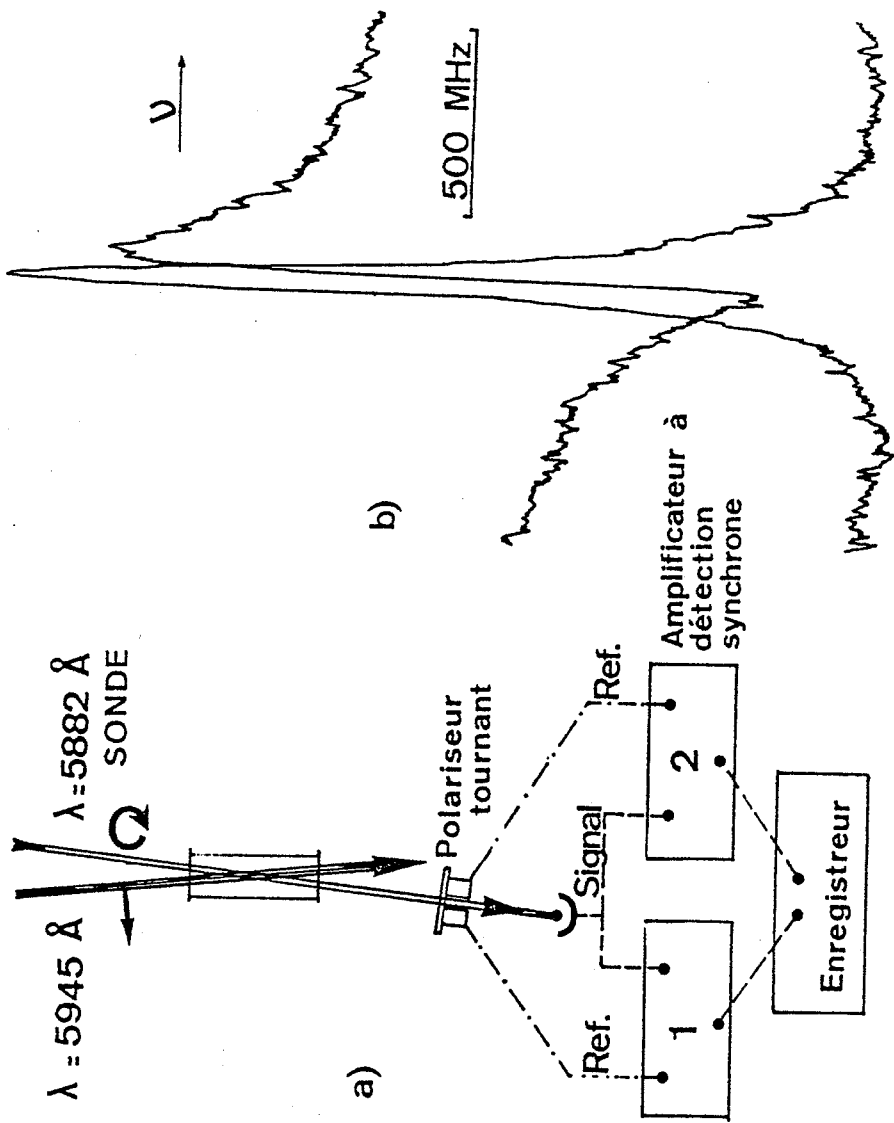
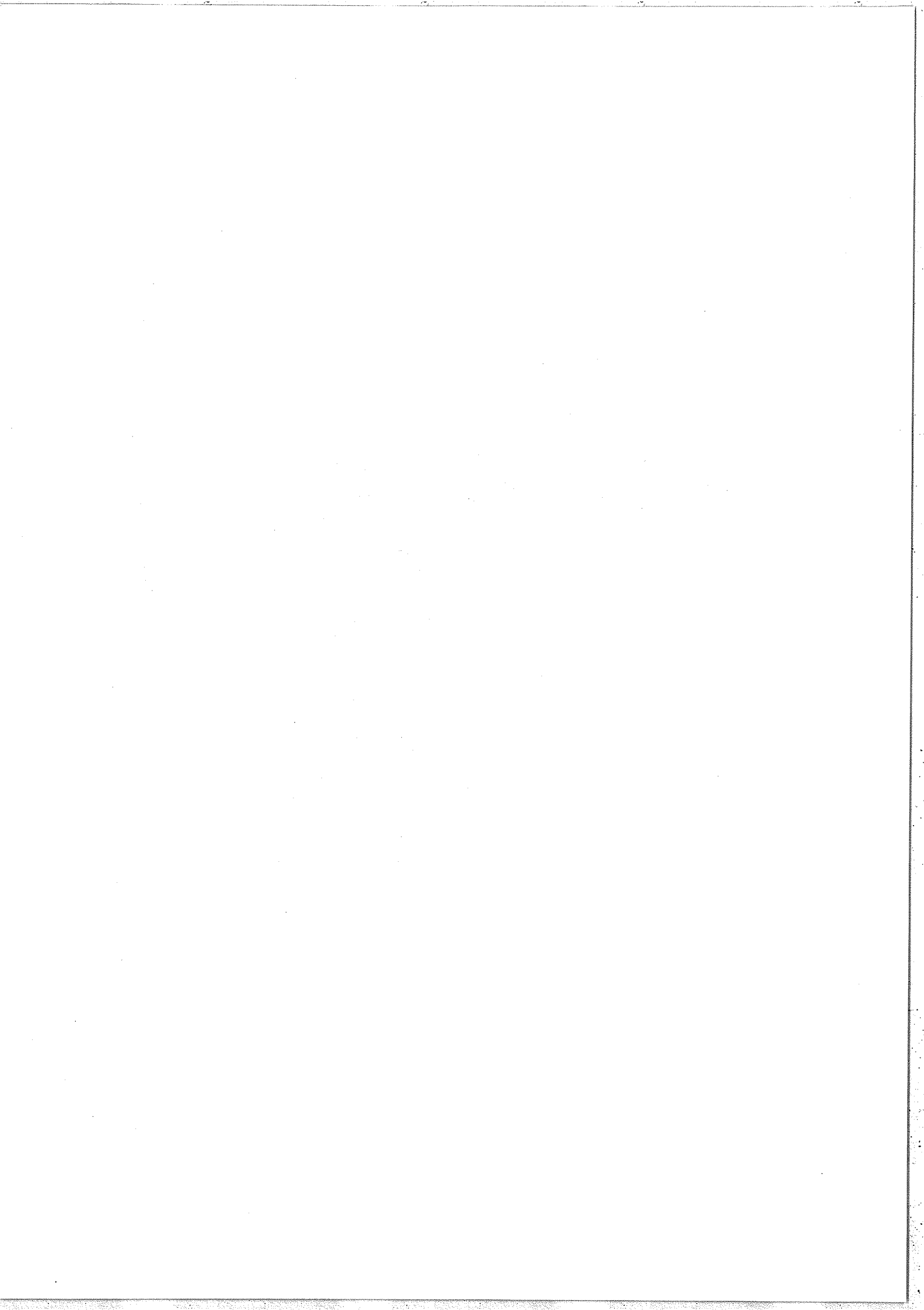


Figure 80 :

- a) dispositif expérimental pour l'observation simultanée du dichroïsme et de la biréfringence.
- b) courbes expérimentales obtenues avec ce dispositif pour le système  $2p_2 \leftarrow 1s_5 \rightarrow 2p_4$ .



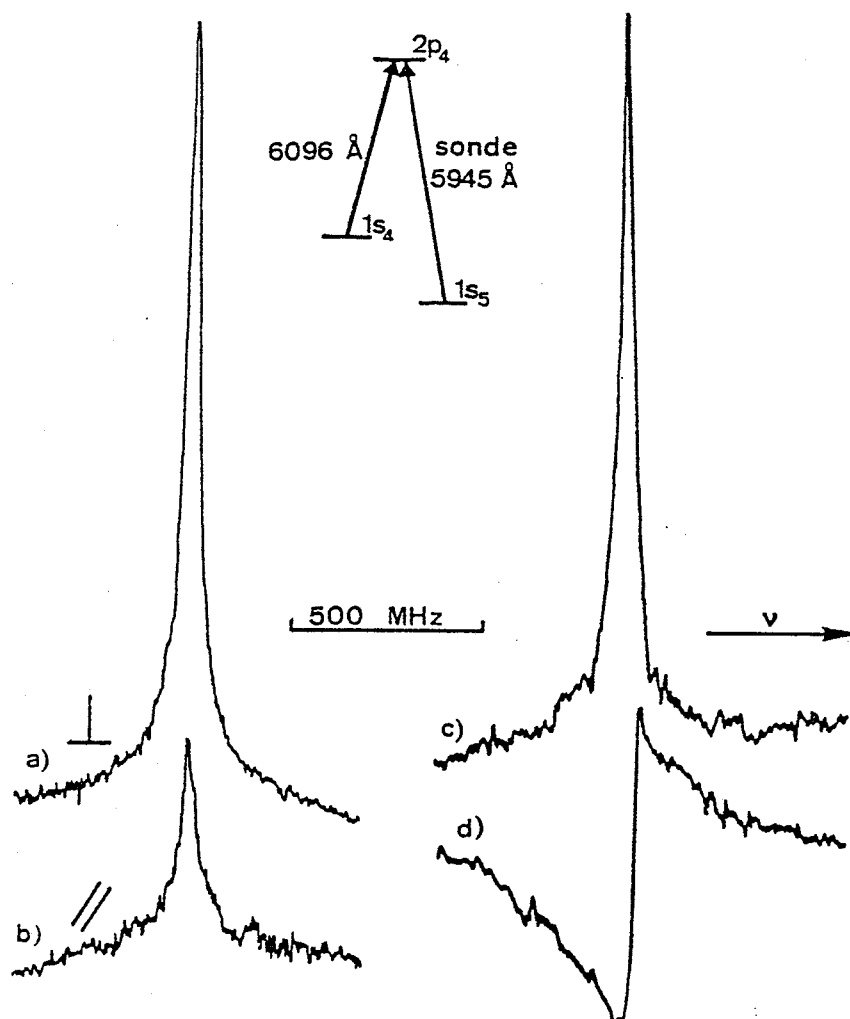
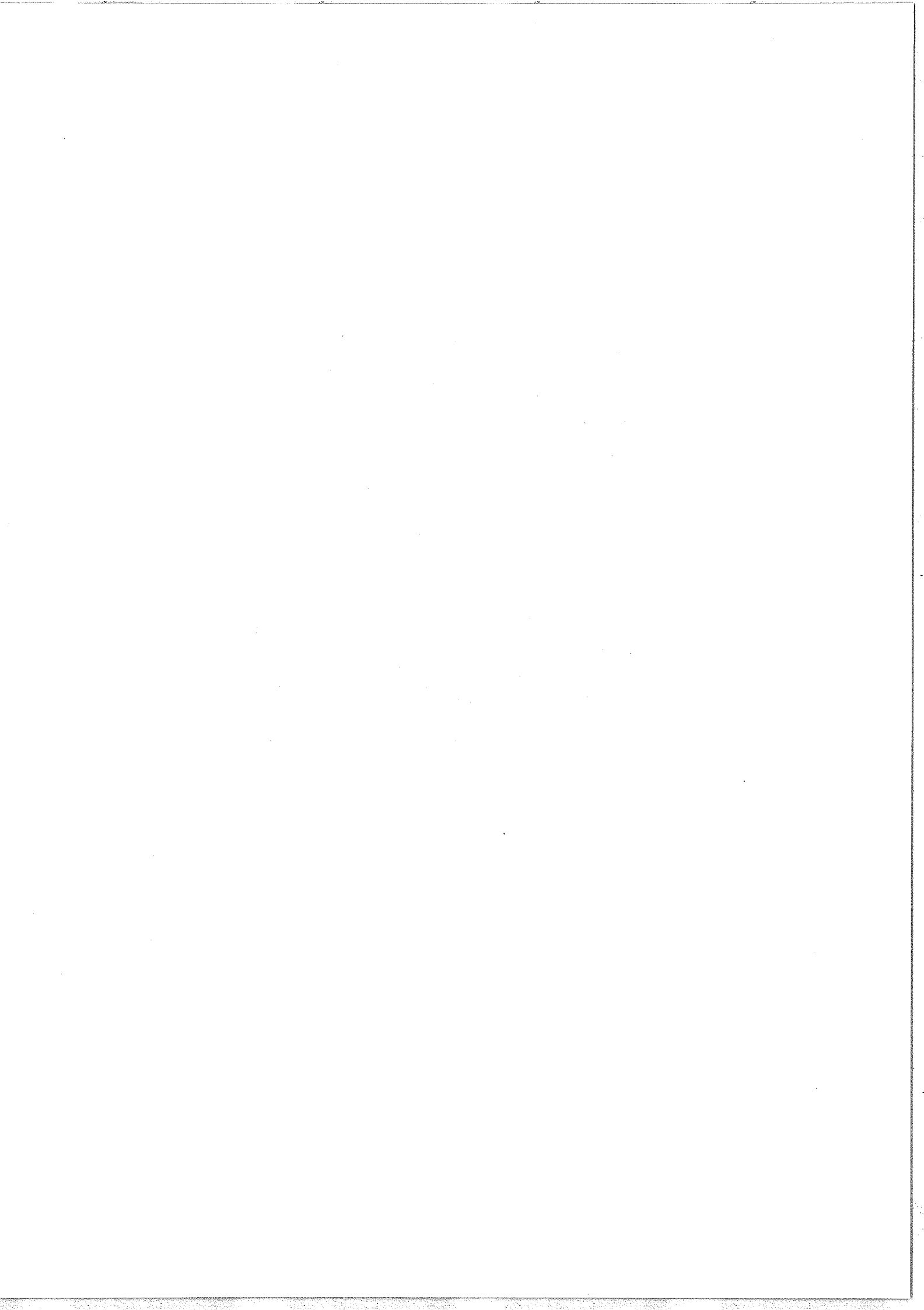


Figure 81 :

Systèmes à trois niveaux  $1s_4 \rightarrow 2p_4 \leftarrow 1s_5$  .

Courbes A.L.N. en polarisations parallèles (a) et perpendiculaires (b).

Courbes de dichroïsme (c) et de biréfringence (d) obtenues simultanément.





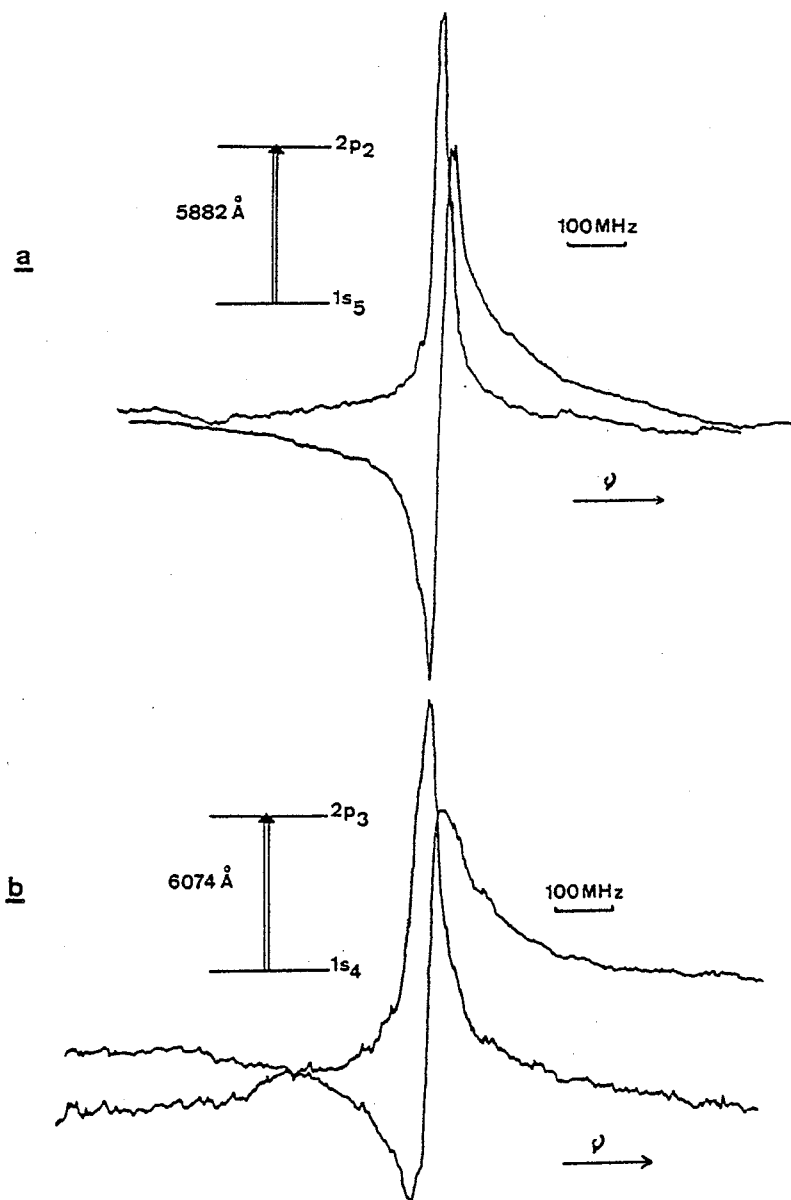
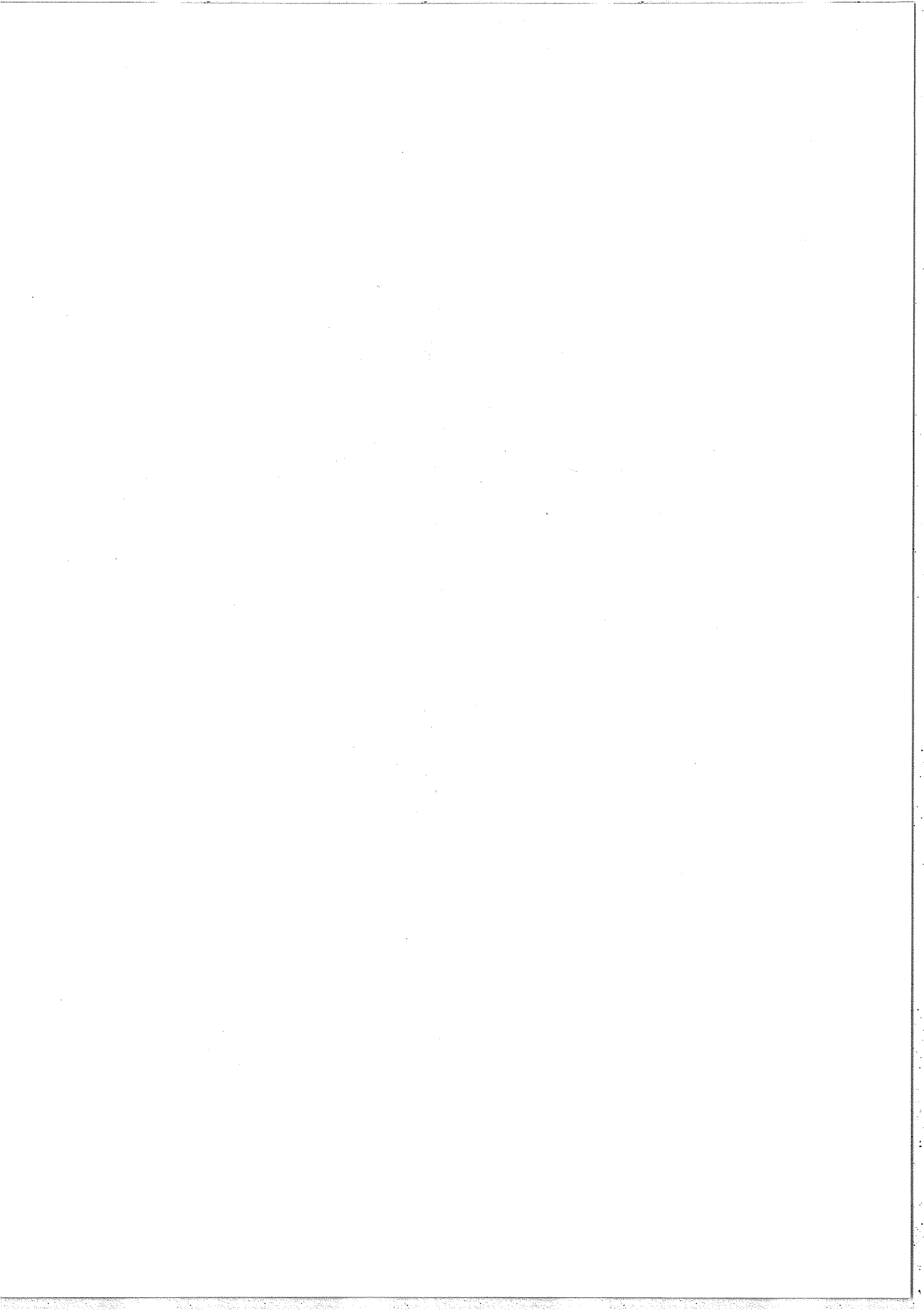


Figure 82 : Courbes de dichroïsme et de biréfringence obtenues simultanément

- a) transition  $1s_5 \rightarrow 2p_2$  de Ne I ,  
 b) transition  $1s_4 \rightarrow 2p_3$  de Ne I .



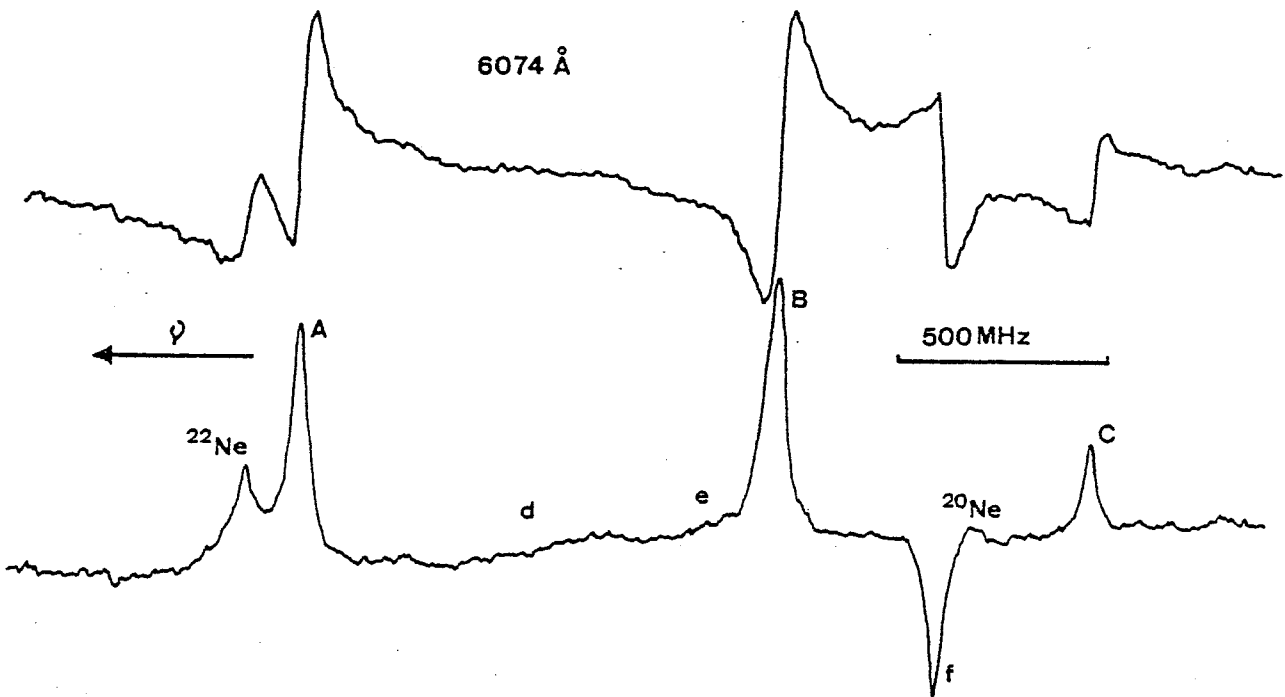
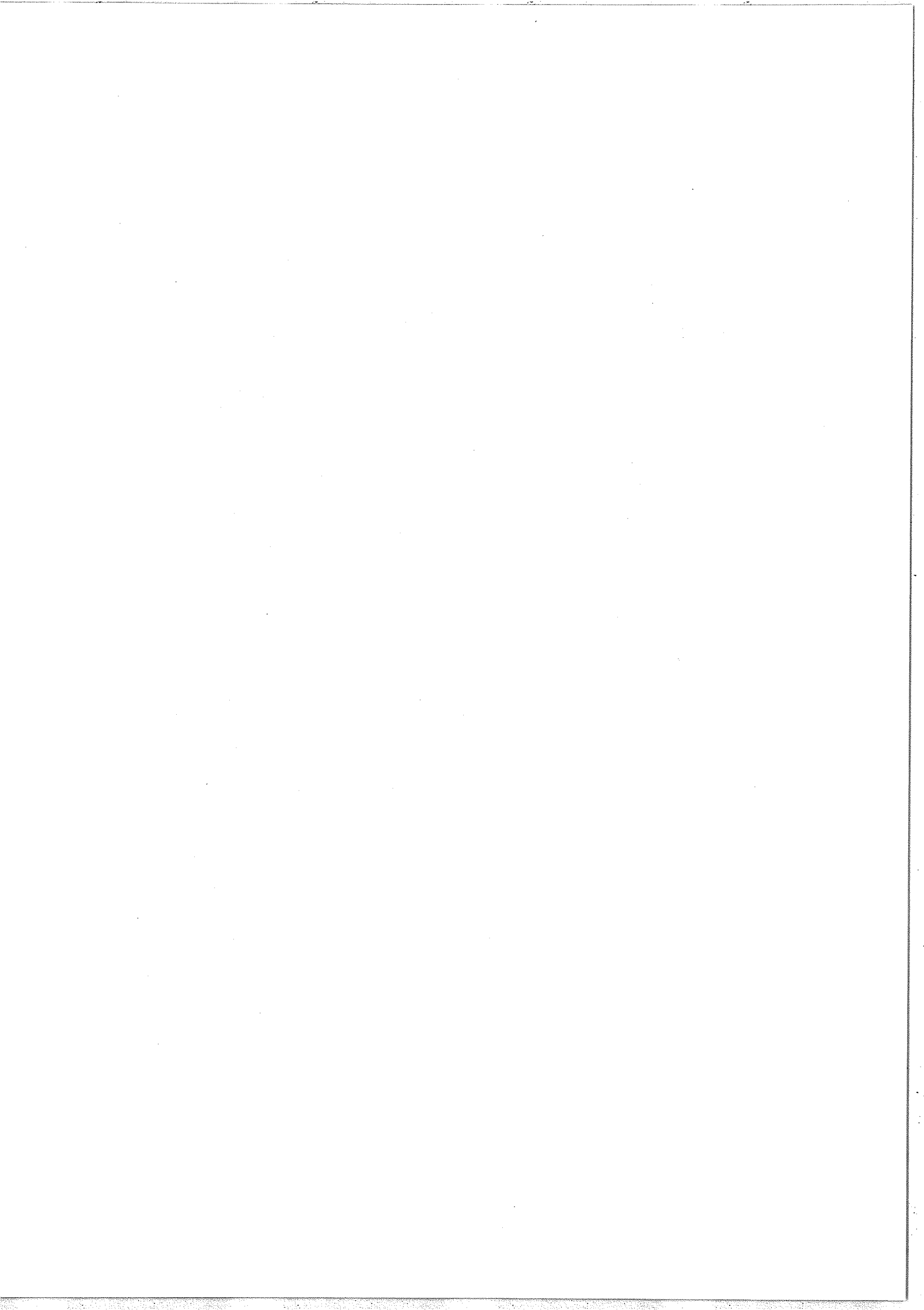


Figure 83 : Structure hyperfine de la raie  $1s_4 \rightarrow 2p_2$  de  $^{21}\text{Ne}$  enregistrée simultanément en dichroïsme et en biréfringence.

D'un autre point de vue, il serait intéressant de considérer les relations entre les quantités observées (dichroïsme et biréfringence) et les paramètres physiques du système atomique (moment cinétique  $J$  des niveaux, probabilités de transitions, durées de vie, ...) et des lasers (polarisation, densité de puissance). Dans certains cas, des calculs utilisant le formalisme de la matrice densité ont déjà été effectués [84-88, 150]. Dans le cas des systèmes à trois niveaux et en relation avec notre étude de l'effet Autler-Townes en fonction des polarisations, il conviendrait de ne plus limiter ce genre de calcul au cas des faisceaux saturants relativement peu intenses. C. Delsart entreprend actuellement un tel calcul et nous envisageons la réalisation de nouvelles expériences de ce type notamment en utilisant de plus fortes puissances saturantes.



## CONCLUSION

Les résultats exposés dans ce mémoire constituent une contribution, d'une part à la spectroscopie sans effet Doppler à l'aide de lasers accordables et, d'autre part, à l'étude de l'interaction atome-rayonnement monochromatique.

Pour ce qui concerne la spectroscopie sans effet Doppler, nous avons étendu le domaine d'application habituel des expériences de spectroscopie laser avec jet atomique en utilisant des jets contenant des atomes excités et nous avons également montré les possibilités offertes par les résonances étroites données dans les vapeurs par les systèmes à trois niveaux. Dans les deux cas nous avons illustré la méthode spectroscopique étudiée par des mesures de structures hyperfines et de déplacements isotopiques dans le néon et le krypton.

Nous avons abordé le problème de l'interaction atome-rayonnement monochromatique à la fois sous l'aspect des effets liés à la puissance lumineuse et sous celui des effets liés à la polarisation des faisceaux et à la dégénérescence des niveaux. Dans le premier cas, nous avons apporté une contribution importante à la théorie de l'effet Stark dynamique dans le cas où l'effet Doppler joue un rôle primordial et nous avons également réalisé des expériences pour mettre en évidence les phénomènes et étudier leurs propriétés. Dans le cas des effets de

polarisation, nous avons abordé le problème des anisotropies induites dans une vapeur par un laser polarisé linéairement d'un point de vue phénoménologique ; nos expériences ont permis de mettre en évidence l'anisotropie de l'absorption (dichroïsme) et d'indice de réfraction (biréfringence) dans les systèmes à 2 ou à 3 niveaux.

Nous nous sommes efforcés, à la fin de chacun des chapitres de notre exposé, de discuter des prolongements possibles de nos travaux ; pour conclure ce mémoire, et après avoir rappelé les principaux résultats obtenus dans chacun des domaines abordés, nous envisagerons de nouveau quelques-unes de ces perspectives.

Des problèmes spectroscopiques intéressants (structure hyperfine de  $^{21}\text{Ne}$ , déplacement isotopique du krypton) se posant pour les gaz rares, nous avons cherché à les résoudre par spectroscopie laser avec un jet atomique. Nous avons donc réalisé, avec un jet atomique de gaz rare excité, des expériences d'absorption à partir de niveaux métastables en utilisant un laser à colorant (Chapitre A). Nous avons ainsi pu mesurer les constantes de structure hyperfine de quelques niveaux excités du néon 21 et les déplacements isotopiques de trois transitions visibles du krypton, confirmant ainsi l'existence d'un effet de volume pour cet élément. Nous avons également montré, sur un cas particulier relativement favorable dans le krypton, la possibilité d'utiliser l'émission stimulée pour étudier des transitions entre niveaux initialement non peuplés dans le jet atomique.

Des méthodes analogues (absorption laser à partir d'un niveau métastable en utilisant un jet atomique excité) sont actuellement utilisées par R.-J. Champeau pour étudier les états de Rydberg du baryum et de l'ytterbium. A l'aide de l'appareil que nous avons utilisé on peut, moyennant quelques modifications (détection d'ions notamment), étudier les états de Rydberg et les états autoionisés des gaz rares. Enfin, à plus long terme, des expériences utilisant un jet d'hydrogène excité sont envisagées dans notre laboratoire.

La technique d'affinement des raies de fluorescence dans les gaz (F.L.N.) ayant montré précédemment à la fois ses grandes possibilités et ses limites dans les cas spectroscopiques complexes, nous avons cherché à l'améliorer en mettant en oeuvre une méthode similaire (A.L.N.) utilisant deux faisceaux laser (un faisceau saturant et un faisceau sonde). L'étude de l'affinement des raies d'absorption induit par laser dans une vapeur atomique (Chapitre B) nous a ainsi permis d'observer les résonances étroites données par les systèmes à trois niveaux dans des conditions de rapport signal/bruit satisfaisantes et de vérifier que la largeur et la forme de ces résonances dépendent fortement du sens relatif de propagation des deux faisceaux laser. Nous avons utilisé cette technique d'affinement des raies (A.L.N.) pour mesurer les déplacements isotopiques 20-22 de 3 transitions du néon et la structure hyperfine dipolaire magnétique et quadrupolaire électrique de 4 niveaux du néon 21 en utilisant un laser He-Ne infrarouge et un laser à colorant.

Les expériences que nous avons ensuite réalisées à l'aide de deux lasers à colorant permettent d'envisager l'utilisation de la technique A.L.N. pour l'étude de niveaux très excités, dans des conditions où elle se compare favorablement à l'absorption à deux photons (de même fréquence) sans effet Doppler. Les résonances données par les systèmes à trois niveaux peuvent également être utilisées pour l'étude de certains types de collisions, notamment les collisions de changement de vitesse et de transfert entre sous-niveaux Zeeman ; J.-L. Le Gouët s'intéresse actuellement à ces problèmes tant du point de vue théorique que du point de vue expérimental.

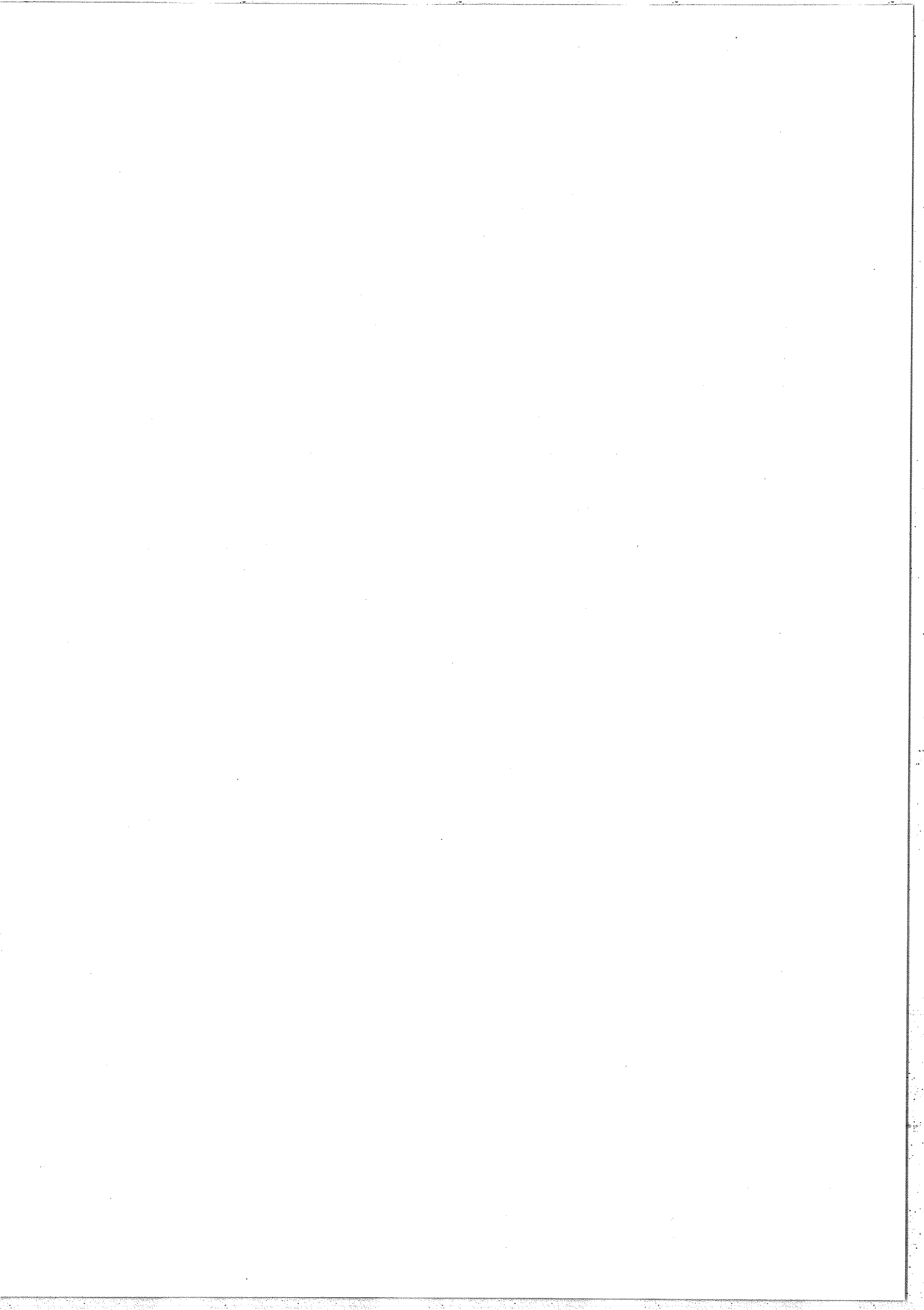
Nous avons poursuivi notre étude des systèmes à trois niveaux en utilisant un laser saturant de forte puissance qui nous a permis d'observer l'effet Stark dynamique (effet Autler-Townes optique) dû à l'interaction du dipôle atomique et du champ électrique oscillant du laser, dans le cas très particulier où l'effet Doppler joue un rôle primordial (Chapitre C). Dans une étude théorique du phénomène, nous

avons montré que l'effet Stark dynamique se manifeste dans ce cas par l'existence, pour le faisceau sonde, d'un domaine de fréquence, situé dans la courbe d'absorption Doppler, où il n'y a pas de classe de vitesse en résonance ; on observe, en conséquence, un "trou Autler-Townes" dans la courbe d'absorption. Cette situation est très différente de celle rencontrée avec des atomes immobiles (expérience en jet atomique) pour lesquels on observe un dédoublement des niveaux sous l'action du champ électromagnétique saturant. Dans notre étude théorique nous proposons une représentation graphique des phénomènes, équivalente à un diagramme d'"atome habillé", qui montre d'une manière simple l'existence du "trou Autler-Townes" et permet de discuter toutes ses caractéristiques en fonction des paramètres du système à trois niveaux. Les prévisions théoriques ont été confrontées aux résultats de deux séries d'expériences. Nous avons notamment vérifié expérimentalement que l'écart des composantes du "doublet" (correspondant aux deux bords du trou dans la courbe d'absorption) est proportionnel à la racine carrée de la puissance saturante et que ce doublet se comporte de la manière prévue dans notre étude théorique quand le laser saturant n'est pas exactement résonnant. Enfin, nous avons mis en évidence l'importance de la dégénérescence Zeeman des niveaux et de la polarisation des faisceaux laser sur l'aspect du doublet observé.

Les autres aspects du phénomène étant maintenant bien compris, c'est dans cette dernière voie que nous allons poursuivre les expériences en cherchant à mettre en évidence l'existence de plusieurs fréquences de Rabi. Le calcul théorique tenant compte de la dégénérescence des 3 niveaux et de la polarisation des faisceaux laser est actuellement entrepris par C. Delsart. Pour compléter l'étude expérimentale de l'effet Stark dynamique on peut également essayer d'observer le "trou Autler-Townes" dans le cas particulier évoqué au §.C.II.2°, c'est-à-dire dans un système à 3 niveaux où il n'y a pas d'absorption du faisceau saturant.



Revenant à des études à faible saturation, nous avons également mis en évidence expérimentalement l'anisotropie induite dans une vapeur atomique par un laser polarisé linéairement et quasi-résonnant (Chapitre D). Nous avons observé les résonances sans effet Doppler correspondantes dans les systèmes à 2 et à 3 niveaux, aussi bien pour l'absorption (dichroïsme) que pour la dispersion (biréfringence). Nous avons montré que ces résonances permettent de s'affranchir de certains effets des collisions qui affectent souvent les résonances d'A.L.N. ou d'absorption saturée, ce qui peut conduire à les utiliser pour résoudre certains problèmes spectroscopiques particuliers. Pour compléter ce travail on peut entreprendre une étude plus quantitative du dichroïsme et de la biréfringence induits par laser et s'intéresser en particulier aux relations qui existent entre les deux phénomènes. Comme dans le cas de l'A.L.N. on peut prolonger une telle étude en considérant en détail les profils des résonances et l'influence des collisions sur ces profils.



BIBLIOGRAPHIE

- [1] Jacquinot P. dans "Very high resolution spectroscopy", R. A. Smith éditeur, Academic Press (1976) p. 1-12.
- [2] Jacquinot P., J. de Physique 34 (1973) Supplément colloque C10, p. 59-62.
- [3] Jacquinot P. dans "High resolution laser spectroscopy". Topics in applied physics, vol. 13, Springer-Verlag (1976) p. 51-93.
- [4] Letokhov V. S. and Chebotayev V. P., "Nonlinear laser spectroscopy", Springer series in optical sciences, vol. 4, Springer-Verlag (1976).
- [5] Grynberg G. and Cagnac B., Rep. on progress in physics 40 (1977) p. 791.
- [6] Jackson D. A. and Kuhn H., Proc. Roy. Soc. A167 (1938) p. 205.
- [7] Jackson D. A., Proc. Roy. Soc. A263 (1961) p. 289-308.
- [8] Meissner K. W., Rev. Mod. Phys. 14 (1942) p. 68.
- [9] Odintsov V. I., Optics and Spectroscopy 6 (1959) p. 250-3 ;  
10 (1961) p. 202-6 .
- [10] Stanley R. W., J. Opt. Soc. Am. 56 (1966) p. 350-6.
- [11] Larson H. P., Thesis, Purdue University (1967).
- [12] Jackson D. A. and Duong Hong Tuan,  
Phys. Rev. Letters 11 (1963) p. 209-10 ;  
Proc. Roy. Soc. 280 (1964) p. 323-39 .
- [13] Odintsov V. I., Opt. Commun. 18 (1965) p. 205-6.
- [14] Vetter R., Thèse, Paris-Orsay (1970).
- [15] Liberman S., Thèse, Orsay (1971).
- [16] Keller J.-C., Thèse de 3ème cycle, Université Paris-Sud, Centre d'Orsay (1972).
- [17] Bréchnignac C., Thèse, Université Paris-Sud, Centre d'Orsay (1977).
- [18] Liberman S., Physica 69 (1973) p. 598-610.
- [19] Bréchnignac C. and Gerstenkorn S., J. Phys. B 10 (1977) p. 413-9.
- [20] Champeau R.-J. and Keller J.-C., E.G.A.S. Conference, Oxford (1976)

- [21] Liberman S. and Pinard J., Applied Phys. Letters 24 (1974) p. 142-4.
- [22] Ramsey N. F., "Molecular beams", Oxford University Press, London (1956).
- [23] Duong H. T., Jacquinet P., Liberman S., Pinard J. et Vialle J.-L., C. R. Acad. Sci. B276 (1973) p. 909-13.
- [24] Duong H. T., Liberman S. and Pinard J., Opt. Commun. 18 (1976) p. 533-5.
- [25] Jacquinet P., Liberman S., Picqué J.-L. and Pinard J., Optics Commun. 8 (1973) p. 163-5.
- [26] Duong H. T. et Vialle J.-L., Opt. Commun. 12 (1974) p. 71-4.
- [27] Picqué J.-L., Thèse, Université Paris-Sud, Centre d'Orsay (1977).
- [28] Champeau R.-J. and Keller J.-C., J. de Physique Lettres 36 (1975) L 161-4.
- [29] Champeau R.-J. and Keller J.-C., J. de Physique Lettres 38 (1977) L 463-6.
- [30] Feneuille S., Schweighofer M.-G. and Oliver G., J. Phys. B 9 (1976) p. 2003-9.
- [31] Mack J. E. and Barkofsky E. C., Rev. Mod. Physics 14 (1942) p. 82.
- [32] Stoner J. O., J. Opt. Soc. Am. 31 (1960) p. 1377-9.
- [33] Hanes G. R., J. Appl. Phys. 31 (1960) p. 2171.
- [34] Aubert D., Baldy A., Chantrel H., Entropie n° 42 (1971) p. 60-4 ;  
Entropie n° 42 (1971) p. 64-5.
- [35] Pierce J. R., "Theory and design of electron beams", Van Nostrand, New York (1949).
- [36] Aymar M., Physica 57 (1972) p. 178-90.  
Thèse, Université Paris-Sud, Centre d'Orsay (1973).
- [37] Juncar P. and Pinard J., Opt. Commun. 14 (1975) p. 438-41.
- [38] Juncar P., Thèse de 3ème cycle, Université Paris-Sud, Centre d'Orsay (1976).
- [39] Jacquinet P., Juncar P. and Pinard J. dans "Laser Spectroscopy III", Springer series in optical sciences, Vol. 7 (1977) p. 417-8.
- [40] Expériences réalisées au C.E.R.N. en 1977 par H. T. Duong, P. Juncar, S. Liberman, J. Pinard, J.-L. Vialle, R. Klapisch, G. Huber ... résultats à paraître.

- [41] Champeau R.-J. and Keller J.-C., J. Phys. B 6 (1973) L 76-9.
- [42] Champeau R.-J., Keller J.-C., Robaux O., Vergès J., J. Phys. B 7 (1974) L 163-6.
- [43] Grosf G. M., Buck P., Lichten W. and Rabi I. I., Phys. Rev. Letters 1 (1958) p. 214-5.
- [44] Robaux O., Optica Acta 18 (1971) p. 523-30 ;  
"Le traitement des images", Journées d'Etudes C.N.E.S., Paris (1972) p. 209-22.
- [45] Mott N. F. and Massey H. S. W., "Theory of atomic collisions", Clarendon Press, Oxford (1950).
- [46] Rasmussen E. and Middelboe V., Kgl. Danske Videns. Selsk. Mat.-Fys. Medd. 32 (1960) p. 1-15.
- [47] Ducas T. W., Feld M. S., Ryan L. W., Skribanowitz N. and Javan A., Phys. Rev. A 5 (1972) p. 1036-43.
- [48] Giacobino E., J. de Physique Lettres 36 (1975) L 161-4 ;  
Thèse, Université Pierre et Marie Curie - Paris VI (1976).
- [49] Delsart C. and Keller J.-C., Opt. Commun. 16 (1976) p. 388-91.
- [50] Biraben F., Grynberg G., Giacobino E. and Bauche J., Phys. Letters 56 (1976) p. 441-2.
- [51] Champeau R.-J. and Keller J.-C., J. Phys. B 11 (1978) p. 391-7.
- [52] Bréchnac C., J. Phys. B 10 (1977) p. 2105-10.
- [53] Gerhardt H., Wenz R. and Matthias E., Phys. Letters 61A (1977) p. 377-9.
- [54] Aymar M., Communication personnelle ;  
Aymar M. et Coulombe M., à paraître.
- [55] Bauche J. and Champeau R.-J., Adv. Atom. Mod. Phys. 12 (1976) p. 39-86.
- [56] Jackson D. A., E.G.A.S. Conference, Oxford (1976) n° 16.
- [57] Kuiper H., Z. Phys. 165 (1961) p. 402-18.
- [58] Rasmussen E. and Middelboe V., Kgl. Danske Videns. Selsk. Mat.-Fys. Medd. 30 (1955) p. 3-22.
- [59] Camus P., Champeau R.-J., Feneuille S., Liberman S., Morillon C. et Pinard J. dans "Etats atomiques et moléculaires couplés à un continuum, Atomes et molécules hautement excités", Colloques Internationaux du C.N.R.S., n° 273 (1977) p. 67-73.

- [60] Feneuille S., Liberman S., Pinard J. et Jacquinet P., C. R. Acad. Sci. 284 (1977) p. 291-4.
- [61] Jacquinet P., Liberman S. and Pinard J. dans "Etats atomiques et moléculaires couplés à un continuum, Atomes et Molécules hautement excités", Colloques Internationaux du C.N.R.S., n° 273 (1977) p. 215-25.
- [62] Schweitzer W. G., Birky M. M. and White J. A., J. Opt. Soc. Am. 57 (1967) p. 1226-30.
- [63] Cordover R. H., Bonczyk P. A. and Javan A., Phys. Rev. Letters 18 (1967) p. 720-2.
- [64] Holt H. K., Phys. Rev. Letters 20 (1968) p. 410-2.
- [65] Hänsch T. and Toschek P., I.E.E.E. J. Quantum Electronics QE 4 (1968) p. 467-8.
- [66] Hänsch T., Keil R., Schabert A., Schmelzer Ch. and Toschek P., Z. Physik 226 (1969) p. 293-6.
- [67] Beterov I. M., Matyugin Yu. A. and Chebotayev V. P., Sov. Phys. J.E.T.P. 37 (1973) p. 756-63.
- [68] Delsart C. and Keller J.-C., Opt. Commun. 15 (1975) p. 91-4.
- [69] Bjorkholm J. E. and Liao P. F., Phys. Rev. A 14 (1976) p. 751-60.
- [70] Liao P. F. and Bjorkholm J. E., Phys. Rev. Letters 36 (1976) p. 1543-5.
- [71] Feld M. S. and Javan A., Phys. Rev. 177 (1969) p. 540-62.
- [72] Feldman B. J. and Feld M. S., Phys. Rev. A 5 (1972) p. 899-918.
- [73] Feld M. S. dans "Fundamental and applied laser physics", Proceedings of the Esfahan Symposium, J. Wiley (1971) p. 369-420.
- [74] Hänsch Th. and Toschek P., Z. Physik 236 (1970) p. 213-44.
- [75] Beterov I. M. and Chebotayev V. P., Progress in Quantum Electronics Vol. 3, part. 1, Pergamon Press (1974).
- [76] Chebotayev V. P. dans "High resolution laser spectroscopy", Topics in applied physics, Vol. 13, Springer-Verlag (1976) p. 201-51.
- [77] Bennett W. R., Phys. Rev. 126 (1962) p. 580-93.
- [78] Voir par exemple :
- a) Cahuzac P., Thèse, Université Paris-Sud, Centre d'Orsay (1974),
  - b) Haroche S. and Hartmann F., Phys. Rev. A 6 (1972) p. 1230-300.

- c) Baklanov E. V. and Chebotayev V. P., Sov. Phys. J.E.T.P. 33  
(1971) p. 300-8.
- [79] Holt H. K., Phys. Rev. Letters 19 (1967) p. 1275-7.
- [80] Hänsch Th. and Toschek P., Proceedings of the Joint Conference on  
Lasers and Opto-Electronics, Southampton (1969) p. 148-60.
- [81] Ducas T. W., Thesis, M.I.T. (1972).
- [82] Feneuille S. and Schweighofer M.-G., J. de Physique 36 (1975) p. 781-6.
- [83] Le Gouët J.-L. and Berman P. R., Phys. Rev. A 17 (1978) p. 52-8.
- [84] Hänsch Th. and Toschek P., Z. Physik 236 (1970) p. 373-82.
- [85] Skribanowitz N., Kelly M. J. and Feld M. S., Phys. Rev. A 6 (1972)  
p. 2302-11.
- [86] Sargent M., Scully M. O. and Lamb W. E., "Lasers Physics", Addison-  
Wesley, London (1974).
- [87] Kaftandjian V. P., Thèse, Université de Provence (1977).
- [88] Dumont M., Thèse, Université de Paris (1971).
- [89] Bréchnignac C., Vetter R. and Berman P. R.  
J. Phys. B 10 (1977) p. 3443-50 ;  
Phys. Rev. A (1978).
- [90] Delsart C. and Keller J.-C., Journal of Applied Physics (1978).
- [91] Feld M. S. dans "Aux frontières de la spectroscopie laser" (Ecole  
d'été de physique théorique, Les Houches 1975), North Holland  
Publishing Company (1976) p. 203-96.
- [92] Smith P. W., Proceedings of the I.E.E.E. 60 (1972) p. 422-40.
- [93] Chebotayev V. P., Beterov I. M. and Lisitsyn V. N., I.E.E.E. Journal  
of Quantum Electronics QE 4 (1968) p. 788-90.
- [94] Lee P. H., Schoefer P. B. and Barker W. B., Applied Physics Letters  
13 (1968) p. 373-5.
- [95] Feld M. S., Javan A. and Lee P. H., Applied Physics Letters 13  
(1968) p. 424-7.
- [96] Bennett W. R., Comments on atomic and molecular physics 11 (1970)  
p. 10-8.
- [97] Lamb W. E., Phys. Rev. 134 (1964) p. 1424-50.
- [98] Feneuille S., Klapisch M., Koenig E. et Liberman S., Physica 48  
(1970) p. 571-88.

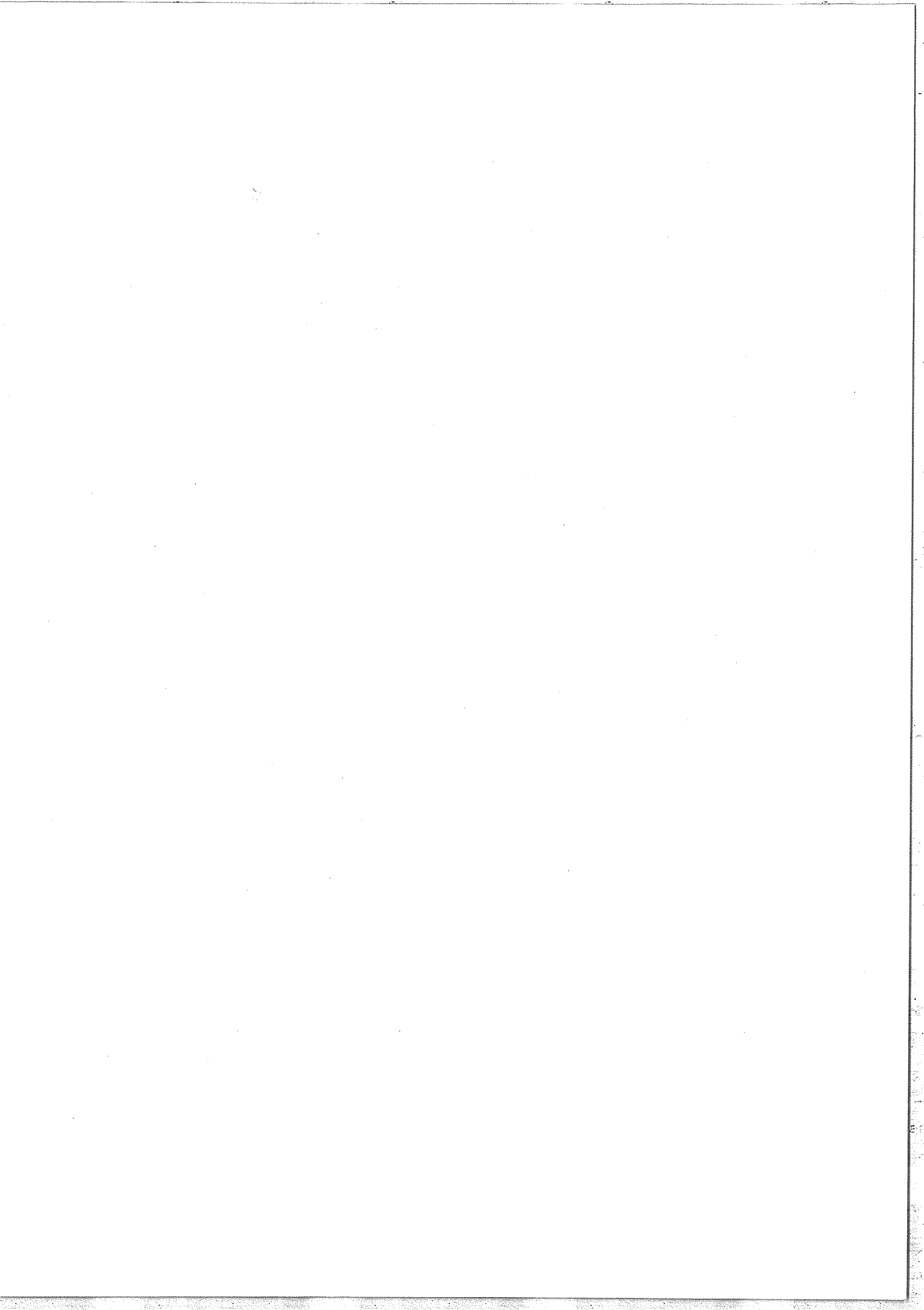
- [99] Gruzdev P. F. and Loginov A. V., *Opt. and Spectrosc.* 35 (1973) p. 1-3.
- [100] Szöke A. and Javan A., *Phys. Rev. Letters* 10 (1963) p. 521-4.
- [101] Cahuzac Ph. and Vetter R., *Phys. Rev. A* 14 (1976) p. 270-2.
- [102] Biraben F., Giacobino E. and Grynberg G., *Phys. Rev. A* 12 (1975) p. 2444-6.
- [103] Giacobino E., Biraben F., Grynberg G. and Cagnac B., *J. de Physique* 38 (1977) p. 623-8.
- [104] Keil R., Schabert A. and Toschek P., *Z. Physik* 261 (1973) p. 71-84.
- [105] Berman P., *Phys. Rev. A* 13 (1976) p. 2191-211.
- [106] Hänsch T. W. and Toschek P., *I.E.E.E. Journal of Quantum Electronics* QE 5 (1969) p. 61-7.
- [107] Autler S. H. and Townes C. H., *Phys. Rev.* 100 (1955) p. 703-22.
- [108] Schuda F., Stroud C. R. and Hercher M., *J. Phys. B* 7 (1974) L 198-202.
- [109] Hartig W., Rasmussen W., Schrieder R. and Walther H., *Z. Physik* 278 (1976) p. 205-10.
- [110] Grove R. E., Wu F. Y. and Ezekiel S., *Phys. Rev. A* 15 (1977) p. 227-33.
- [111] Cohen-Tannoudji C. dans "Aux frontières de la spectroscopie laser" (Ecole d'été de physique théorique, Les Houches 1975), North Holland Publishing Company (1976) p. 203-96.
- [112] Picqué J.-L. and Pinard J., *J. Phys. B* 9 (1976) L 77-81.
- [113] Bjorkholm J. E. and Liao P. F., *Opt. Commun.* 21 (1977) p. 132-6.
- [114] Gray H. R. and Stroud C. R., *IVth Rochester Conference on Coherence and Quantum Optics* (1977), Abstracts.
- [115] Ezekiel S., *Third International Conference on Laser Spectroscopy (TICOLS)* (1977).
- [116] Schabert A., Keil R. and Toschek P. E., *Applied Phys.* 6 (1975) p. 181-4.
- [117] Schabert A. Keil R. and Toschek P. E., *Opt. Commun.* 13 (1975) p. 265-7.
- [118] Delsart C. and Keller J.-C., *J. Phys. B* 9 (1976) p. 2769-75.
- [119] Liao P. F., Bjorkholm J. E. and Gordon J. P., *Phys. Rev. Letters* 39 (1977) p. 15-8.
- [120] Salomaa R. and Stenholm S., *J. Phys. B* 8 (1975) p. 1795-805.
- [121] Whitley R. M. and Stroud C. R., *Phys. Rev. A* 14 (1976) p. 1498-513.
- [122] Berman P. R. and Ziegler J., *Phys. Rev. A* 15 (1977) p. 2042-52.



- [123] Cohen-Tannoudji C. and Reynaud S., J. Phys. B 10 (1977) p. 2311-32.
- [124] Salomaa R., Physica Scripta 15 (1977) p. 251-8.
- [125] Delsart C. and Keller J.-C., J. de Physique, Avril 1978.
- [126] Cohen-Tannoudji C., Cours présenté au Collège de France (1977), non publié.
- [127] Cohen-Tannoudji C., Hoffbeck F. et Reynaud S., à paraître, Hoffbeck F., Thèse de 3ème cycle, Paris (1978).
- [128] Salvador and Baron "Numerical method in Engineering" (Practice Hall, 1961).
- [129] Koenig E., Physics Letters 34A (1971) p. 284-6.
- [130] Lilly R. A., J.O.S.A. 65 (1975) p. 389-91,  
J.O.S.A. 66 (1976) p. 971-2 .
- [131] Bridges J. M. and Wiese W. L., Phys. Rev. A 2 (1970) p. 285-93.
- [132] Cohen-Tannoudji C. and Reynaud S., J. de Physique Lettres 38 (1977) L 173-6.
- [133] Delsart C. and Keller J.-C. dans "Laser Spectroscopy III", Springer series in optical sciences, Vol. 7 (1977) p. 154-9.
- [134] Delsart C. and Keller J.-C., Communication (Post-deadline), IXth International Conference on Quantum Electronics", Amsterdam (1976) non publié.
- [135] Arutyunyan V. M. et al., Sov. Phys. J.E.T.P. 41 (1975) p. 22-5.
- [136] Heiman D., Hellwarth R. W., Levenson M. D. and Martin G., Phys. Rev. Letters 36 (1976) p. 189-92.
- [137] Liao P. F. and Bjorklund G. C., Phys. Rev. Letters 36 (1976) p. 584-7.
- [138] Wieman C. and Hänsch T. W., Phys. Rev. Letters 36 (1976) p. 1170-3.
- [139] Le Floch, Le Naour and Stephan G., Opt. Commun. 20 (1977) p. 42-4.
- [140] Keller J.-C. and Delsart C., Opt. Commun. 20 (1977) p. 147-9.
- [141] Adonts G. G. and Kocharyan L. M., Opt. and Spectrosc. 40 (1976) p. 410-2.
- [142] Liao P. F. and Bjorklund G. C., Phys. Rev. A 15 (1977) p. 2009-18.
- [143] Le Floch, Le Naour and Stephan G., Phys. Rev. Letters 39 (1977) p. 1611-4.
- [144] Stephan G., Le Naour R. and Le Floch A., Phys. Rev. A, Janvier 1978.

- [145] Hänsch T. W. dans "Tunable lasers and applications", Springer series in optical sciences, Vol. 3 (1976) p. 326-39.
- [146] Bonilla I. R., Demtröder W., Paech F. and Schmiedl R. dans "Laser Spectroscopy III", Springer series in optical sciences, Vol. 7 (1977) p. 437-8.
- [147] Song I. I., Lee J. H. and Levenson M. D. dans "Laser Spectroscopy III", Springer series in optical sciences, Vol. 7 (1977) p. 450-1.
- [148] Radloff W., Stert V. and Ritze H.-H. dans "Laser Spectroscopy III", Springer series in optical sciences, Vol. 7 (1977) p. 454.
- [149] Eesley G. L., Levenson M. D. and Tolles W. M., I.E.E.E. Journal of Quantum Electronics QE 14 (1978) p. 45-9.
- [150] Kaftandjian V. P. and Klein L., Phys. Letters 62A (1977) p. 317-21.
- [151] Jenkins F. A. and White H. E., "Fundamentals of optics", McGraw-Hill Book Company (1950) p. 527-42.
- [152] Bruhat G., Cours de Physique Générale - Optique, 6ème édition, Masson (1965).
- [153] Mascart M. E., Traité d'Optique, Tome premier, Gauthier-Villars (1889) p. 529-51.
- [154] Letokhov V. S. dans "High Resolution Laser Spectroscopy", Topics in applied physics, Vol. 13, Springer Verlag (1976) p. 95-171.
- [155] Bordé C., Camy G., Decomps B. et Pottier L.,  
-C. R. Acad. Sci. 277 (1973) p. 381-3 ;  
-dans "Méthodes de spectroscopie sans largeur Doppler de niveaux excités de systèmes moléculaires simples", Colloques Internationaux du C.N.R.S., n° 217 (1973) p. 231-3.
- [156] Couillaud B. and Ducasse A., Phys. Rev. Letters 35 (1975) p. 1276-9.
- [157] Im Thek-De et al., Sov. Phys. J.E.T.P. 35 (1972) p. 865-6.
- [158] Sargent M. Phys. Rev. A 14 (1976) p. 524-7,  
et références indiquées dans cet article.
- [159] Holt H. K., Phys. Rev. Letters 29 (1972) p. 1138-40.
- [160] Cahuzac Ph. and Damaschini R., Opt. Commun. 20 (1977) p. 111-4.
- [161] Smith P. W. and Hänsch T., Phys. Rev. Letters 26 (1971) p. 740.
- [162] Bauche J. and Keller J.-C., Phys. Letters 36A (1971) p. 211-2.

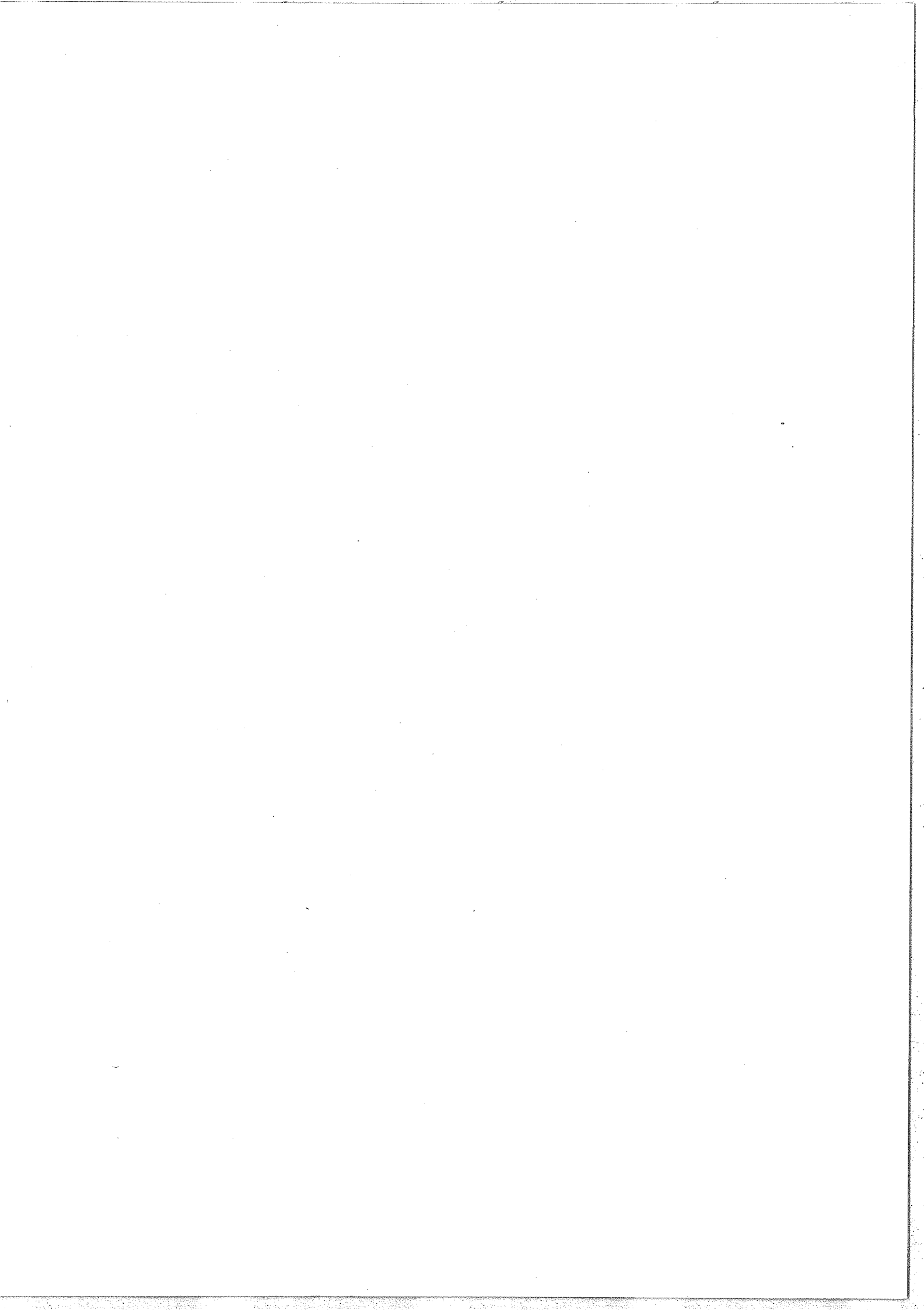
- [163] Keller J.-C., J. Phys. B 6 (1973) p. 1771-8.
- [164] Healy W. P., J. Phys. B 9 (1976) p. 2499-510.
- [165] Toll J. S., Phys. Rev. 104 (1956) p. 1760-70.
- [166] Maitland A. and Dunn M. H., "Laser Physics", North Holland Publishing Company p. 53-4.
- [167] Pinard M., Laloe F., Séminaire Collège de France (1978).
- [168] Colomb I., Dumont M., Opt. Commun. 21 (1977) p. 143-6.



Parvenu au terme de cet exposé, je voudrais exprimer ma profonde gratitude à Monsieur le Professeur P. JACQUINOT pour l'accueil bienveillant qu'il m'a réservé au Laboratoire Aimé Cotton, où j'ai pu bénéficier de conditions de travail très favorables. Je tiens à remercier Monsieur le Professeur P. JACQUINOT et Monsieur S. FENEUILLE, Directeur de Recherche au C. N. R. S., pour l'intérêt qu'ils ont porté à cette thèse et pour les encouragements qu'ils m'ont prodigués au cours de ce travail.

Je suis profondément reconnaissant à Monsieur le Professeur C. COHEN-TANNOUDJI, à Monsieur le Professeur P. TOSCHEK et à Monsieur J. BADOZ, Directeur de Recherche au C. N. R. S., de l'intérêt qu'ils ont bien voulu manifester pour mon travail en acceptant de faire partie du jury de soutenance.

Je voudrais réserver une place toute particulière dans ces remerciements à R.-J. CHAMPEAU et à C. DELSART en soulignant que les résultats exposés dans cette thèse sont aussi les leurs. C'est grâce à une collaboration quotidienne que nous avons pu mener à bien les expériences et interpréter les résultats ; j'espère que nous poursuivrons cette collaboration fructueuse et amicale dans l'avenir. Je tiens à leur exprimer également ma reconnaissance pour l'aide qu'il m'ont apportée dans la rédaction du mémoire, en acceptant d'en faire une "première lecture" critique et détaillée.



J'aimerais également remercier ici, même s'il m'est impossible de tous les citer, tous ceux qui m'ont, d'une manière ou d'une autre, aidé au cours de ce travail.

Ayant été parmi les premiers utilisateurs du sigmamètre et du laser à colorant construits au laboratoire, je sais combien l'aide efficace et désintéressée de P. JUNCAR, J. PINARD et C. VIALLE m'a été utile pour mettre à profit les possibilités de ces instruments.

La conception et la réalisation des "fours" à décharge du jet atomique doivent beaucoup à l'habileté et à la compétence de R. BARONNET et de M. OPPENHEIMER et je tiens à les remercier chaleureusement.

Je voudrais également souligner combien le concours de l'ensemble du personnel technique du laboratoire m'a été précieux. Je remercie tout particulièrement ceux à qui j'ai fait le plus souvent appel : M. OPPENHEIMER pour les réalisations en verre, G. GOLMAN pour les couches minces et R. LEROUX pour l'électronique.

Enfin, je remercie les personnes qui se sont chargées de réaliser, avec soin et diligence, ce mémoire : G. FONTAINE pour la dactylographie, M. REY pour l'illustration.

